

INTERNATIONAL COOPERATION TREATY

PCT

NOTIFICATION OF ELECTION

(PCT Rule 61.2)

From the INTERNATIONAL BUREAU

To:

Commissioner
 US Department of Commerce
 United States Patent and Trademark
 Office, PCT
 2011 South Clark Place Room
 CP2/5C24
 Arlington, VA 22202
 ETATS-UNIS D'AMERIQUE
 in its capacity as elected Office

Date of mailing (day/month/year) 17 May 2001 (17.05.01)	
International application No. PCT/DE00/02743	Applicant's or agent's file reference OZ00499WO-A
International filing date (day/month/year) 16 August 2000 (16.08.00)	Priority date (day/month/year) 16 August 1999 (16.08.99)
Applicant KELLER, Uwe et al	

1. The designated Office is hereby notified of its election made:

☒ in the demand filed with the International Preliminary Examining Authority on:

15 March 2001 (15.03.01)

☐ in a notice effecting later election filed with the International Bureau on:

2. The election ☒ was
☐ was not

made before the expiration of 19 months from the priority date or, where Rule 32 applies, within the time limit under Rule 32.2(b).

The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland Facsimile No.: (41-22) 740.14.35	Authorized officer R. Forax Telephone No.: (41-22) 338.83.38
--	---

THIS PAGE BLANK (USPTO)

Translation

PATENT COOPERATION TREATY

PCT

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

(PCT Article 36 and Rule 70)

10/04/9850

Applicant's or agent's file reference OZ00499 PCT	FOR FURTHER ACTION See Notification of Transmittal of International Preliminary Examination Report (Form PCT/IPEA/416)	
International application No. PCT/DE00/02743	International filing date (day/month/year) 16 August 2000 (16.08.00)	Priority date (day/month/year) 16 August 1999 (16.08.99)
International Patent Classification (IPC) or national classification and IPC C03C 27/12		
Applicant HT TROPLAST AG		

<p>1. This international preliminary examination report has been prepared by this International Preliminary Examining Authority and is transmitted to the applicant according to Article 36.</p> <p>2. This REPORT consists of a total of <u>6</u> sheets, including this cover sheet.</p> <p><input checked="" type="checkbox"/> This report is also accompanied by ANNEXES, i.e., sheets of the description, claims and/or drawings which have been amended and are the basis for this report and/or sheets containing rectifications made before this Authority (see Rule 70.16 and Section 607 of the Administrative Instructions under the PCT).</p> <p>These annexes consist of a total of <u>11</u> sheets.</p>	
<p>3. This report contains indications relating to the following items:</p> <p>I <input checked="" type="checkbox"/> Basis of the report</p> <p>II <input type="checkbox"/> Priority</p> <p>III <input type="checkbox"/> Non-establishment of opinion with regard to novelty, inventive step and industrial applicability</p> <p>IV <input type="checkbox"/> Lack of unity of invention</p> <p>V <input checked="" type="checkbox"/> Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement</p> <p>VI <input type="checkbox"/> Certain documents cited</p> <p>VII <input type="checkbox"/> Certain defects in the international application</p> <p>VIII <input type="checkbox"/> Certain observations on the international application</p>	

Date of submission of the demand 15 March 2001 (15.03.01)	Date of completion of this report 20 November 2001 (20.11.2001)
Name and mailing address of the IPEA/EP	Authorized officer
Facsimile No.	Telephone No.

THIS PAGE BLANK (USPTO)

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

PCT/DE00/02743

I. Basis of the report

1. This report has been drawn on the basis of (*Replacement sheets which have been furnished to the receiving Office in response to an invitation under Article 14 are referred to in this report as "originally filed" and are not annexed to the report since they do not contain amendments.*):

- ☐ the international application as originally filed.
- ☒ the description, pages 1, 8-11, as originally filed.
 pages _____, filed with the demand.
 pages 2-7, 7a, filed with the letter of 25 September 2001 (25.09.2001).
 pages _____, filed with the letter of _____.
- ☒ the claims, Nos. _____, as originally filed.
 Nos. _____, as amended under Article 19.
 Nos. _____, filed with the demand.
 Nos. 1-8, filed with the letter of 25 September 2001 (25.09.2001).
 Nos. _____, filed with the letter of _____.
- ☐ the drawings, sheets/fig _____, as originally filed.
 sheets/fig _____, filed with the demand.
 sheets/fig _____, filed with the letter of _____.
 sheets/fig _____, filed with the letter of _____.

2. The amendments have resulted in the cancellation of:

- ☐ the description, pages _____
- ☐ the claims, Nos. _____
- ☐ the drawings, sheets/fig _____

3. ☐ This report has been established as if (some of) the amendments had not been made, since they have been considered to go beyond the disclosure as filed, as indicated in the Supplemental Box (Rule 70.2(c)).

4. Additional observations, if necessary:

THIS PAGE BLANK (USPTO)

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

PCT/DE 00/02743

V. Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement

1. Statement

Novelty (N)	Claims	1 - 8	YES
	Claims		NO
Inventive step (IS)	Claims	1 - 8	YES
	Claims		NO
Industrial applicability (IA)	Claims	1 - 8	YES
	Claims		NO

2. Citations and explanations

Reference is made to the following documents:

- D1: DATABASE CHEMABS [Online] CHEMICAL ABSTRACTS SERVICE, COLUMBUS, OHIO, US; TAJIMA, OKISHI ET AL.: 'Poly(vinyl butyral) compositions with excellent cold resistance and mechanical properties' retrieved from STN Database accession no. 130:326067HCA XP002158657 & JP-A-11 106 595 (ASAHI DENKA KOGYO K.K.) 20 April 1999 (1999-04-20)
- D2: DATABASE CHEMABS [Online] CHEMICAL ABSTRACTS SERVICE, COLUMBUS, OHIO, US; UEDA, NAOKI ET AL.: 'Middle layer for laminated glass with good sound insulation for wide-rang temperature' retrieved from STN Database accession no. 122:11750 HCA XP002158658 & JP-A-06 115 980 (SEKISUI CHEMICAL CO LTD, JAPAN) 26 April 1994 (1994-04-26)
- D3: US-A-5 332 774 (KLANG JEFFREY A ET AL) 26 July 1994 (1994-07-26)
- D4: EP-A-0 041 229 (DU PONT) 9 December 1981 (1981-12-09)

THIS PAGE BLANK (USPTO)

1.1 **Claim 1** of the present application seeks protection for a composite safety glass consisting of two panes of glass and an intermediate layer arranged therebetween. The intermediate layer is formed from an aqueous partially-acetalized polyvinyl alcohol modified by a plasticizer mixture. This plasticizer mixture contains one or a plurality of substances from the group comprising polyalkylglycols, in particular polyethylene glycols and their derivatives. Substitution of all of the terminal OH groups by OR groups is explicitly excluded. Claim 1 further specifies that the portion of polyalkylene glycols in the plasticizer used in the intermediate layer should be more than 5 wt %.

D1 describes the use of plasticizer-containing polyvinylbutyral as the intermediate layer in composite safety glass (D1, abstract). The plasticizers are mixtures of polyethylene glycol or its derivatives such as, for example, hexaethylene glycol. However, only improved mechanical properties of the PVB layer are explicitly mentioned.

D2 describes good soundproofing properties of a composite glass (D2, abstract) containing a multilayer polymer layer. All the polymer layers contain plasticizer-modified polyvinylalkyrals (C₄-C₆). The middle layer consists of polyvinylbutyral modified with triethylene glycol-bis(2-ethylbutylate). The use of polyalkylene glycols with only one OR group is not mentioned.

D3 (column 3, lines 6-10) describes, for example, the use of dihexyladipate as plasticizer for polyvinylbutyrals. Further, more suitable

THIS PAGE BLANK (USPTO)

plasticizers, such as glycol ether (C₂-C₃₀) (D3, column 3, lines 21-28) and their mixtures or ethylene oxide-propylene oxide copolymers with average molecular weights of between 250 and 10000 g/mol (D3, column 3, lines 30-40), are also described.

D4 describes the use of modified polyvinylbutyral (PVB) in composite glass (see, e.g., Claim 1 of D4). The description indicates that the PVB is modified with plasticizers from the group comprising polypropylene oxide oligomers (D4, page 1, line 27). The PVB contains between 15 and 30 wt % of a vinylalcohol group (D4, page 1, lines 23-24) and the average molecular weight of the plasticizers is between 300 and 2500 g/mol (D4, page 3, lines 31-33).

However, none of the documents discloses the polyalkylate films claimed in the present application or their further use in soundproofing. Therefore the subject matter of Claims 1 to 8 is considered novel pursuant to PCT Article 33(2).

The object of the present invention can be considered that of improving sound insulation in a composite glass by simple means (e.g. only an intermediate layer between the panes of glass). In the present application, this object is achieved by increasing the portion of polyethylene glycols in the plasticizer mixture. This increase brings about a significant change in the soundproofing properties in the high frequency range (diagram 1).

THIS PAGE BLANK (USPTO)

For the following reasons, the way of achieving this object proposed in **Claims 1 and 7** of the present application involves an inventive step (PCT Article 33(3)):

D2 is taken as the closest prior art. It mentions good soundproofing in conjunction with a plasticized multilayer polyvinylbutyral layer in a composite glass. A disubstituted derivative of triethylene glycol is used as the plasticizer. Neither D2 nor any of the other above-mentioned documents suggests the soundproofing properties of the group comprising polyalkylene glycols. A person skilled in the art would thus not necessarily connect soundproofing with this group of substances and thus would not arrive at the approach proposed in the application without being inventive.

Claims 2 to 6 are dependent on **Claim 1** and thus likewise meet the PCT novelty and inventive step requirements.

The subject matter of **Claim 8** concerns the use of given polyalkylene glycols as soundproofing-increasing additives in polyvinylalcohol resins. A use of the polyalkylene glycols in this sense cannot be derived from any of the citations. Therefore this claim also meets the PCT novelty and inventive step requirements.

THIS PAGE BLANK (USPTO)

VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT FÜR DAS GEBIET DES PATENTWESENS

PCT

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

(Artikel 18 sowie Regeln 43 und 44 PCT)

Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts OZ00499W0-A	WEITERES VORGEHEN siehe Mitteilung über die Übermittlung des internationalen Recherchenberichts (Formblatt PCT/ISA/220) sowie, soweit zutreffend, nachstehender Punkt 5	
Internationales Aktenzeichen PCT/DE 00/ 02743	Internationales Anmeldedatum (Tag/Monat/Jahr) 16/08/2000	(Frühestes) Prioritätsdatum (Tag/Monat/Jahr) 16/08/1999
Anmelder HT TROPLAST AG		

Dieser internationale Recherchenbericht wurde von der Internationalen Recherchenbehörde erstellt und wird dem Anmelder gemäß Artikel 18 übermittelt. Eine Kopie wird dem Internationalen Büro übermittelt.

Dieser internationale Recherchenbericht umfaßt insgesamt 3 Blätter.

☒ Darüber hinaus liegt ihm jeweils eine Kopie der in diesem Bericht genannten Unterlagen zum Stand der Technik bei.

1. Grundlage des Berichts

a. Hinsichtlich der **Sprache** ist die internationale Recherche auf der Grundlage der internationalen Anmeldung in der Sprache durchgeführt worden, in der sie eingereicht wurde, sofern unter diesem Punkt nichts anderes angegeben ist.

☐ Die internationale Recherche ist auf der Grundlage einer bei der Behörde eingereichten Übersetzung der internationalen Anmeldung (Regel 23.1 b)) durchgeführt worden.

b. Hinsichtlich der in der internationalen Anmeldung offenbarten **Nucleotid- und/oder Aminosäuresequenz** ist die internationale Recherche auf der Grundlage des Sequenzprotokolls durchgeführt worden, das

☐ in der internationalen Anmeldung in Schriftlicher Form enthalten ist.

☐ zusammen mit der internationalen Anmeldung in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.

☐ bei der Behörde nachträglich in schriftlicher Form eingereicht worden ist.

☐ bei der Behörde nachträglich in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.

☐ Die Erklärung, daß das nachträglich eingereichte schriftliche Sequenzprotokoll nicht über den Offenbarungsgehalt der internationalen Anmeldung im Anmeldezeitpunkt hinausgeht, wurde vorgelegt.

☐ Die Erklärung, daß die in computerlesbarer Form erfaßten Informationen dem schriftlichen Sequenzprotokoll entsprechen, wurde vorgelegt.

2. ☐ Bestimmte Ansprüche haben sich als nicht recherchierbar erwiesen (siehe Feld I).

3. ☐ Mangelnde Einheitlichkeit der Erfindung (siehe Feld II).

4. Hinsichtlich der Bezeichnung der Erfindung

☒ wird der vom Anmelder eingereichte Wortlaut genehmigt.

☐ wurde der Wortlaut von der Behörde wie folgt festgesetzt:

5. Hinsichtlich der Zusammenfassung

☐ wird der vom Anmelder eingereichte Wortlaut genehmigt.

☒ wurde der Wortlaut nach Regel 38.2b) in der in Feld III angegebenen Fassung von der Behörde festgesetzt. Der Anmelder kann der Behörde innerhalb eines Monats nach dem Datum der Absendung dieses internationalen Recherchenberichts eine Stellungnahme vorlegen.

6. Folgende Abbildung der Zeichnungen ist mit der Zusammenfassung zu veröffentlichen: Abb. Nr. ---

☐ wie vom Anmelder vorgeschlagen

☐ weil der Anmelder selbst keine Abbildung vorgeschlagen hat.

☐ weil diese Abbildung die Erfindung besser kennzeichnet.

☐ keine der Abb.

THIS PAGE BLANK (USPTO)

Feld III

WORTLAUT DER ZUSAMMENFASSUNG (Fortsetzung von Punkt 5 auf Blatt 1)

Bekannte Zwischenfolien für Verbundgläser mit verbesserter Schalldämmung sind entweder mehrschichtig aufgebaut oder aus besonderen Materialien gefertigt, die sich nicht in üblichen Anlagen weiterverarbeiten lassen. Aufgabe der vorliegenden Erfindung ist es, eine möglichst einschichtige Zwischenfolien für Verbundgläser mit verbesserter Schalldämmung auf der Basis von PVB zur Verfügung zu stellen, die bei weitgehend unveränderter Verarbeitbarkeit eine bei Raumtemperatur verbesserte Schalldämmung der daraus hergestellten Verbundgläser ermöglicht. Hierzu schlägt die Erfindung eine Zwischenfolie vor enthaltend: - 50 bis 80 Gew.-% PVB (teilacetalisierter Polyvinylalkohol); - 20 bis 50 Gew.-% einer Weichmachermischung, enthaltend; -- 30 bis 70 Gew.-% - gerechnet als Anteil an der Weichmachermischung - eines oder mehrerer Polyalkylenglykole der Gruppe bestehend aus; --- Polyalkylenglykolen der allgemeinen Formel $\text{HO}-(\text{R}-\text{O})_n-\text{H}$ mit $\text{R} = \text{Alkylen}$ und $n > 5$; --- Blockcopolymeren aus Ethylen- und Propylenglykol der allgemeinen Formel $\text{HO}-(\text{CH}_2-\text{CH}_2-\text{O})_n-(\text{CH}_2-\text{CH}(\text{CH}_3)-\text{O})_m-\text{H}$ mit $n > 2$, $m > 3$ und $(n+m) < 25$; --- Derivaten von Blockcopolymeren aus Ethylen- und Propylenglykol der allgemeinen Formel $\text{R}_1\text{O}-(\text{CH}_2-\text{CH}_2-\text{O})_n-(\text{CH}_2-\text{CH}(\text{CH}_3)-\text{O})_m-\text{H}$ bzw. $\text{HO}-(\text{CH}_2-\text{CH}_2-\text{O})_n-(\text{CH}_2-\text{CH}(\text{CH}_3)-\text{O})_m-\text{R}_1$ mit $n > 2$, $m > 3$ und $(n+m) < 25$ und R_1 als organischem Rest; --- Derivate von Polyalkylenglykolen der allgemeinen Formel $\text{R}_1-\text{O}-(\text{R}_2-\text{O})_n-\text{H}$ mit $\text{R}_2 = \text{Alkylen}$ und $n > 2$, bei denen der Wasserstoff von einer der beiden terminalen Hydroxygruppen des Polyalkylenglykols durch einen organischen Rest R_1 ersetzt ist; --- Derivate von Polyalkylenglykolen der allgemeinen Formel $\text{R}_1-\text{O}-(\text{R}_2-\text{O})_n-\text{R}_3$ mit $\text{R}_2 = \text{Alkylen}$ und $n > 5$, bei denen der Wasserstoff von beiden terminalen Hydroxygruppen des Polyalkylenglykols durch einen organischen Rest R_1 bzw. R_3 ersetzt ist.

THIS PAGE BLANK (USPTO)

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen

/DE 00/02743

A. KLASIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES

IPK 7 C03C27/12 B32B17/10 C08L29/14
71:02)

/(C08L29/14,

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)

IPK 7 C03C B32B C08L C08K

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

CHEM ABS Data, WPI Data, PAJ, EPO-Internal

C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X	<p>DATABASE CHEMABS 'Online! CHEMICAL ABSTRACTS SERVICE, COLUMBUS, OHIO, US; HATSUTORI, TSUYOSHI: "Multilayer middle film for automobile and building window safety glass" retrieved from STN Database accession no. 123:58269 HCA XP002158657 Zusammenfassung & JP 07 097240 A (SEKISUI CHEMICAL CO LTD, JAPAN) 11. April 1995 (1995-04-11) --- -/--</p>	1-8

☒ Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen

☒ Siehe Anhang Patentfamilie

* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :

- *A* Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist
- *E* älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist
- *L* Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)
- *O* Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht
- *P* Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist

T Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist

X Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden

Y Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist

Z Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

26. Januar 2001

Absendedatum des internationalen Recherchenberichts

15/02/2001

Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde
Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,
Fax: (+31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Bediensteter

DE LOS ARCOS, E

THIS PAGE BLANK (USPTO)

C.(Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN		
Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
A	<p>DATABASE CHEMABS 'Online! CHEMICAL ABSTRACTS SERVICE, COLUMBUS, OHIO, US; UEDA, NAOKI ET AL: "Middle layer for laminated glass with good sound insulation for wide-rang temperature" retrieved from STN Database accession no. 122:11750 HCA XP002158658 Zusammenfassung & JP 06 115980 A (SEKISUI CHEMICAL CO LTD, JAPAN) 26. April 1994 (1994-04-26)</p> <p>---</p>	1-8
X	<p>US 5 332 774 A (KLANG JEFFREY A ET AL) 26. Juli 1994 (1994-07-26) Spalte 3, Zeile 18 -Spalte 4, Zeile 3; Ansprüche; Beispiele</p> <p>---</p>	1-8
X	<p>EP 0 041 229 A (DU PONT) 9. Dezember 1981 (1981-12-09) Ansprüche; Beispiele</p> <p>-----</p>	1-8

THIS PAGE BLANK (USPTO)

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No

DE 00/02743

Patent document cited in search report		Publication date	Patent family member(s)		Publication date
JP 7097240	A	11-04-1995	NONE		
JP 6115980	A	26-04-1994	NONE		
US 5332774	A	26-07-1994	US	5380597 A	10-01-1995
EP 0041229	A	09-12-1981	US	4293615 A	06-10-1981
			AU	542992 B	28-03-1985
			AU	7113281 A	03-12-1981
			BR	8103247 A	16-02-1982
			CA	1153681 A	13-09-1983
			DE	3161114 D	10-11-1983
			ES	502641 D	01-10-1982
			ES	8207463 A	16-12-1982
			JP	1483433 C	27-02-1989
			JP	57020352 A	02-02-1982
			JP	63033455 B	05-07-1988
			MX	158888 A	29-03-1989
			SU	1090259 A	30-04-1984
			ZA	8103577 A	26-01-1983

THIS PAGE BLANK (USPTO)

VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS

PCT

REC'D 22 NOV 2001

WIPO PCT

INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT

(Artikel 36 und Regel 70 PCT)



Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts OZ00499 PCT	WEITERES VORGEHEN siehe Mitteilung über die Übersendung des internationalen vorläufigen Prüfungsberichts (Formblatt PCT/IPEA/416)	
Internationales Aktenzeichen PCT/DE00/02743	Internationales Anmeldedatum (Tag/Monat/Jahr) 16/08/2000	Prioritätsdatum (Tag/Monat/Tag) 16/08/1999
Internationale Patentklassifikation (IPK) oder nationale Klassifikation und IPK C03C27/12		
Anmelder HT TROPLAST AG		

- Dieser internationale vorläufige Prüfungsbericht wurde von der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde erstellt und wird dem Anmelder gemäß Artikel 36 übermittelt.
- Dieser BERICHT umfaßt insgesamt 6 Blätter einschließlich dieses Deckblatts.
 - ☒ Außerdem liegen dem Bericht ANLAGEN bei; dabei handelt es sich um Blätter mit Beschreibungen, Ansprüchen und/oder Zeichnungen, die geändert wurden und diesem Bericht zugrunde liegen, und/oder Blätter mit vor dieser Behörde vorgenommenen Berichtigungen (siehe Regel 70.16 und Abschnitt 607 der Verwaltungsrichtlinien zum PCT).

Diese Anlagen umfassen insgesamt 11 Blätter.

3. Dieser Bericht enthält Angaben zu folgenden Punkten:

- I ☒ Grundlage des Berichts
- II ☐ Priorität
- III ☐ Keine Erstellung eines Gutachtens über Neuheit, erfinderische Tätigkeit und gewerbliche Anwendbarkeit
- IV ☐ Mangelnde Einheitlichkeit der Erfindung
- V ☒ Begründete Feststellung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung
- VI ☐ Bestimmte angeführte Unterlagen
- VII ☐ Bestimmte Mängel der internationalen Anmeldung
- VIII ☐ Bestimmte Bemerkungen zur internationalen Anmeldung

Datum der Einreichung des Antrags 15/03/2001	Datum der Fertigstellung dieses Berichts 20.11.2001
Name und Postanschrift der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde:  Europäisches Patentamt D-80298 München Tel. +49 89 2399 - 0 Tx: 523656 epmu d Fax: +49 89 2399 - 4465	Bevollmächtigter Bediensteter Wirth, S Tel. Nr. +49 89 2399 8007 

THIS PAGE BLANK (USPTO)

I. Grundlag d s Berichts

1. Hinsichtlich der **Bestandteile** der internationalen Anmeldung (*Ersatzblätter, die dem Anmeldeamt auf eine Aufforderung nach Artikel 14 hin vorgelegt wurden, gelten im Rahmen dieses Berichts als "ursprünglich eingereicht" und sind ihm nicht beigelegt, weil sie keine Änderungen enthalten (Regeln 70.16 und 70.17)*):
Beschreibung, Seiten:

1,8-11 ursprüngliche Fassung

2-7,7a eingegangen am 26/09/2001 mit Schreiben vom 25/09/2001

Patentansprüche, Nr.:

1-8 eingegangen am 26/09/2001 mit Schreiben vom 25/09/2001

2. Hinsichtlich der **Sprache**: Alle vorstehend genannten Bestandteile standen der Behörde in der Sprache, in der die internationale Anmeldung eingereicht worden ist, zur Verfügung oder wurden in dieser eingereicht, sofern unter diesem Punkt nichts anderes angegeben ist.

Die Bestandteile standen der Behörde in der Sprache: zur Verfügung bzw. wurden in dieser Sprache eingereicht; dabei handelt es sich um

- ☐ die Sprache der Übersetzung, die für die Zwecke der internationalen Recherche eingereicht worden ist (nach Regel 23.1(b)).
- ☐ die Veröffentlichungssprache der internationalen Anmeldung (nach Regel 48.3(b)).
- ☐ die Sprache der Übersetzung, die für die Zwecke der internationalen vorläufigen Prüfung eingereicht worden ist (nach Regel 55.2 und/oder 55.3).

3. Hinsichtlich der in der internationalen Anmeldung offenbarten **Nucleotid- und/oder Aminosäuresequenz** ist die internationale vorläufige Prüfung auf der Grundlage des Sequenzprotokolls durchgeführt worden, das:

- ☐ in der internationalen Anmeldung in schriftlicher Form enthalten ist.
- ☐ zusammen mit der internationalen Anmeldung in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.
- ☐ bei der Behörde nachträglich in schriftlicher Form eingereicht worden ist.
- ☐ bei der Behörde nachträglich in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.
- ☐ Die Erklärung, daß das nachträglich eingereichte schriftliche Sequenzprotokoll nicht über den Offenbarungsgehalt der internationalen Anmeldung im Anmeldezeitpunkt hinausgeht, wurde vorgelegt.
- ☐ Die Erklärung, daß die in computerlesbarer Form erfassten Informationen dem schriftlichen Sequenzprotokoll entsprechen, wurde vorgelegt.

4. Aufgrund der Änderungen sind folgende Unterlagen fortgefallen:

- ☐ Beschreibung, Seiten:
- ☐ Ansprüche, Nr.:

THIS PAGE BLANK (USPTO)

INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT

Internationales Aktenzeichen . PCT/DE00/02743

☐ Zeichnungen, Blatt:

5. ☐ Dieser Bericht ist ohne Berücksichtigung (von einigen) der Änderungen erstellt worden, da diese aus den angegebenen Gründen nach Auffassung der Behörde über den Offenbarungsgehalt in der ursprünglich eingereichten Fassung hinausgehen (Regel 70.2(c)).

(Auf Ersatzblätter, die solche Änderungen enthalten, ist unter Punkt 1 hinzuweisen; sie sind diesem Bericht beizufügen).

6. Etwaige zusätzliche Bemerkungen:
siehe Beiblatt

V. Begründete Feststellung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung

1. Feststellung

Neuheit (N)	Ja: Ansprüche	1-8 Ja
	Nein: Ansprüche	
Erfinderische Tätigkeit (ET)	Ja: Ansprüche	1-8 Ja
	Nein: Ansprüche	
Gewerbliche Anwendbarkeit (GA)	Ja: Ansprüche	1-8 Ja
	Nein: Ansprüche	

2. Unterlagen und Erklärungen
siehe Beiblatt

THIS PAGE BLANK (USPTO)

Zu Punkt I

Grundlage des Bescheides

Es wird auf die folgenden Dokumente verwiesen:

- D1: DATABASE CHEMABS [Online] CHEMICAL ABSTRACTS SERVICE, COLUMBUS, OHIO, US; TAJIMA, OKISHI ET AL.: 'Poly(vinyl butyral) compositions with excellent cold resistance and mechanical properties' retrieved from STN Database accession no. 130:326067HCA XP002158657 & JP 11 106595 A (ASAHI DENKA KOGYO K.K.) 20. April 1999 (1999-04- 20)
- D2: DATABASE CHEMABS [Online] CHEMICAL ABSTRACTS SERVICE, COLUMBUS, OHIO, US; UEDA, NAOKI ET AL: 'Middle layer for laminated glass with good sound insulation for wide-rang temperature' retrieved from STN Database accession no. 122:11750 HCA XP002158658 & JP 06 115980 A (SEKISUI CHEMICAL CO LTD, JAPAN) 26. April 1994 (1994-04- 26)
- D3: US-A-5 332 774 (KLANG JEFFREY A ET AL) 26. Juli 1994 (1994-07-26)
- D4: EP-A-0 041 229 (DU PONT) 9. Dezember 1981 (1981-12-09)

Zu Punkt V

Begründete Feststellung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung

- 1.1 Im **Anspruch 1** der vorliegenden Anmeldung wird Schutz gesucht für ein Verbundsicherheitsglas, das aus zwei Glasscheiben, sowie einer zwischen den beiden Glasscheiben angeordneten Zwischenschicht besteht. Dabei wird die Zwischenschicht gebildet aus einem wasserhaltigen teilacetalisierten Polyvinylalkohol, der durch eine Weichmachermischung modifiziert ist. Diese Weichmachermischung enthält dabei eine oder mehrere Substanzen aus der Gruppe der Polyalkylglykole, insbesondere der Polyethylenglykole und deren Derivate. Eine Substitution aller terminalen OH-Gruppen durch OR-Gruppen wird dabei explizit ausgeschlossen. Zusätzlich wird in Anspruch 1 spezifiziert, daß der Anteil der Polyalkylenglykole im Weichmacher, der in der Zwischenschicht verwendet wird, mehr als 5 Gew.% betragen sollte.

THIS PAGE BLANK (USPTO)

Dokument D1 beschreibt die Verwendung von Polyvinylbutyral, das Weichmacher enthält, als Zwischenschicht in Verbundsicherheitsglas (D1, Zusammenfassung). Bei den Weichmachern handelt es sich dabei um Mischungen von Polyethylenglykol oder dessen Derivaten wie zum Beispiel Hexaethylenglykol. Explizit erwähnt werden jedoch nur verbesserte mechanische Eigenschaften der PVB-Schicht.

D2 beschreibt gute schallisolierende Eigenschaften eines Verbundglases (D2, Zusammenfassung), das eine mehrschichtige Polymerlage enthält. Alle polymeren Schichten enthalten dabei mit Weichmachern modifizierte Polyvinylalkyrale (C_4 - C_6). Die mittlere Schicht besteht dabei aus Polyvinylbutyral, welches mit Triethylenglykol-bis(2-ethylbutylat) modifiziert wurde. Die Anwendung von Polyalkylenglykolen mit nur einer OR-Gruppe wird nicht erwähnt.

Dokument D3 beschreibt in Spalte 3, Zeilen 6-10 beispielsweise die Verwendung von Dihexyladipat als Weichmacher für Polyvinylbutyrale. Desweiteren werden weitere, geeignetere Weichmacher, wie zum Beispiel Glykolether (C_2 - C_{30}) (D3, Spalte 3, Zeilen 21-28) und deren Mischungen oder Ethylenoxid-Propylenoxid-Copolymere mit mittleren Molekulargewichten zwischen 250 und 10000 g/mol (D3, Spalte 3, Zeilen 30-40), beschrieben.

D4 beschreibt die Verwendung von modifiziertem Polyvinylbutyral (PVB) in Verbundglas (siehe zum Beispiel Anspruch 1 in D4). Dabei ist aus der Beschreibung zu entnehmen, daß das PVB mit Weichmachern aus der Gruppe der Polypropylenoxid-oligomere (D4, Seite 1, Zeile 27) modifiziert wird. Das PVB enthält dabei einen Vinylalkoholrest zwischen 15 und 30 Gew.-% (D4, Seite 1, Zeile 23-24) und das mittlere Molekulargewicht der Weichmacher liegt dabei zwischen 300 und 2500 g/mol (D4, Seite 3, Zeile 31-33).

Keines der Dokumente offenbart allerdings die in der vorliegenden Anmeldung beanspruchte Zusammensetzung der Polyalkylatfolien, sowie deren weitere Verwendung bei der Schalldämmung. Der Gegenstand der Ansprüche 1-8 wird somit als neu gemäß Artikel 33(2) PCT.

Die mit der vorliegenden Erfindung zu lösende Aufgabe kann darin gesehen werden, daß eine bessere Schallisolierung in einem Verbundglas durch einfache Konstruktionen (beispielsweise nur eine Zwischenschicht zwischen den

THIS PAGE BLANK (USPTO)

Glasplatten) erreicht wird. Diese Aufgabe wird in der vorliegenden Anmeldung durch eine Erhöhung des Anteils von Polyethylenglykolen in der Weichmachermischung gelöst. Mit der besagten Erhöhung ergibt sich eine signifikante Änderung der schalldämmenden Eigenschaften im Bereich hoher Frequenzen. (Diagramm 1).

Die in den **Ansprüchen 1 und 7** der vorliegenden Anmeldung für diese Aufgabe vorgeschlagene Lösung beruht aus den folgenden Gründen auf einer erfinderischen Tätigkeit (Artikel 33(3) PCT):

Es wird von D2 als nächstliegendem Stand der Technik ausgegangen. Es wird eine gute Schalldämmung in Verbindung mit einer weichgemachten, mehrschichtigen Polyvinylbutyralschicht in einem Verbundglas erwähnt. Als Weichmacher wird dabei ein disubstituiertes Derivat des Triethylenglykols verwendet. Weder in diesem, noch in den weiteren oben zitierten Dokumenten gibt es Hinweise auf die schalldämmenden Eigenschaften der Gruppe der Polyalkylenglykole. Ein Fachmann würde somit die Schalldämmung nicht zwangsläufig mit dieser Stoffgruppe verbinden und somit nicht ohne erfinderische Tätigkeit auf die in der Anmeldung vorgeschlagene Lösung kommen.

Die **Ansprüche 2-6** sind vom **Anspruch 1** abhängig und erfüllen damit ebenfalls die Erfordernisse des PCT in bezug auf Neuheit und erfinderische Tätigkeit.

Der Gegenstand von **Anspruch 8** beinhaltet die Verwendung von bestimmten Polyalkylenglykolen als die Schalldämmung erhöhende Zusätze in Polyvinylalkohol-Harzen. Eine Verwendung der Polyalkylenglykole im oben genannten Sinne ist aus keiner der Entgegenhaltungen zu entnehmen. Somit erfüllt auch dieser Anspruch die Erfordernisse des PCT in bezug auf Neuheit und erfinderische Tätigkeit.

THIS PAGE BLANK (USPTO)

fung der Verglasung. Beispielsweise läßt sich mit einer herkömmlichen Verbundglasscheibe des Aufbaus 3 mm Glas/0,38 mm PVB-Folie/3 mm Glas ein R_w von 33 dB erzielen, während für eine monolithische Scheibe der Dicke 6 mm 32 dB gemessen werden.

5 Das Dämpfungsverhalten der bekannten Verbundsicherheitsgläser ist jedoch für viele Anwendungszwecke nicht ausreichend. Mißt man bei Raumtemperatur die akustische Dämpfung eines Verbundsicherheitsglases gemäß dem Stand der Technik mit einer herkömmlichen PVB-Folie als Zwischenschicht, so steigt die Dämpfung mit steigender Frequenz in weiten Bereichen stetig und angenähert linear an, wobei jedoch insbesondere im Frequenzbereich zwischen ca. 1.000 und 3.500 Hz ein deutlicher Einbruch der Dämpfung (relatives Minimum der Dämpfung, Koinzidenzeinbruch) zu beobachten ist. Die Lage dieses Koinzidenzeinbruchs ist abhängig von der Dicke der verwendeten Gläser. Bei Verwendung von Glasscheiben einer Dicke von je 4 mm liegt der Koinzidenzeinbruch etwa im Bereich von 1.250 bis 2500 Hz, bei Verwendung dünnerer Scheiben verschiebt sich der Bereich des Dämpfungseinbruchs zu höheren Frequenzen, während dieser Bereich bei Verwendung dickerer Glasscheiben zu niedrigeren Frequenzen hin verschoben wird. Die Frequenz, bei der die Dämpfungskurve im Bereich des Koinzidenzeinbruchs das relative Minimum durchläuft, wird im folgenden Koinzidenzfrequenz genannt.

25

Stand der Technik

Es wurden in der Vergangenheit bereits Vorschläge gemacht, das akustische Dämpfungsverhalten von Verbundsicherheitsgläsern zu verbessern. Aus der US 5,773,102 (= EP 0 763 420 A1) und der JP 07-097241 A ist ein Verbundsicherheitsglas bekannt, bei dem zur Verbesserung der akustischen Eigenschaften neben einer Standard-PVB-Folie eine spezielle, akustisch wirksame Folie eingesetzt wird.

In der DE 197 05 586 C1 und der EP 0 844 075 A1 wird für eine schalldämpfende Verbundglasscheibe für Kraftfahrzeuge ebenfalls eine mehrschichtige thermoplastische Zwischenschicht vorgeschlagen. Der Verbund besteht aus einer viskoelastischen Acryl-

THIS PAGE BLANK (USPTO)

polymerfolie, die auf beiden Seiten unter Zwischenschaltung jeweils einer 0,01 bis 0,1 mm dicken Folie aus Polyethylen-terephthalat und jeweils einer thermoplastischen Klebefolie aus Polyvinylbutyral mit zwei Silikatglasscheiben verbunden ist.

Solche mehrschichtigen Zwischenschichten sind jedoch aufwendig in der Herstellung und häufig auch in der Weiterverarbeitung.

Aus der DE 24 61 775 A1 ist schließlich eine Verbundglasscheibe bekannt, die durch Zugabe sehr hoher Mengen an Standardweichmacher, hier Flexol, eine zwar verbesserte Schalldämmung erzielt, wobei die verwendete Weichmachermenge jedoch zu erhöhter Klebrigkeit führt, wodurch die Folie kaum mit herkömmlichen Anlagen weiterzuverarbeiten ist.

Die JP 11-106595 A betrifft einen PVB-Ansatz, der auf 100 Gew.-Teile Polyvinylbutyralharz 20 bis 80 Gew-% eines Ether-Ester-Weichmachers enthält. Der Weichmacher wiederum enthält 20 bis 60 Gew.-% Triethylenglykol bis (2-Ethylhexanoat) (3G8) und 40 - 80 Gew.-% eines zweifach substituierten Polyethylenglykols. Dieser Entgegenhaltung lag die Aufgabe zugrunde, einen PVB-Ansatz mit guter Tieftemperatur-Beständigkeit und guten mechanischen Eigenschaften des Verbundsicherheitsglases zu erreichen. Ein Hinweis auf eine verbesserte Schalldämmung findet sich in dieser Schrift nicht.

Aus der US 5,332,774 A ist eine für die Herstellung von Verbundsicherheitsglas geeignete weichmacherhaltige Folie aus teillacetalisierten Polyvinylalkoholen bekannt. Die Polyvinylalkohole werden mit 4-Hydroxy-Butanal acetalisiert. Die so hergestellten Polyvinylacetal-Harze können nach dieser Entgegenhaltung jedoch nicht mit herkömmlichen Weichmachern plastifiziert werden. Aus diesem Grunde werden spezielle Weichmacher eingesetzt, darunter auch bestimmte Polyalkylenglykole. Ein Hinweis auf eine Verbesserung der Schalldämm-Leistung gibt diese Schrift nicht.

THIS PAGE BLANK (USPTO)

Aus der EP 0 041 229 A ist die Verwendung von Poly(propylenoxid)-Derivaten als Weichmacher für PVB bekannt. Aus dieser Schrift ergeben sich keinerlei Hinweise auf bestimmte Mischungsverhältnisse mit Standard-Weichmachern oder auf die
5 akustische Wirksamkeit solcher Weichmacher-Mischungen.

Aufgabe

Aufgabe der vorliegenden Erfindung ist es daher, eine möglichst einschichtige Zwischenfolie für Verbundgläser auf der Basis von PVB zur Verfügung zu stellen, die bei weitgehend unveränderter
10 Verarbeitbarkeit eine bei Raumtemperatur verbesserte Schalldämmung der daraus hergestellten Verbundgläser ermöglicht. Ein weiteres Anliegen der Erfindung ist es, Verbundgläser mit einer Zwischenschicht auf der Basis von PVB mit bei Raumtemperatur verbesserter Schalldämmung zur Verfügung zu stellen.

15

Darstellung der Erfindung

Die Erfindung löst diese Aufgabe durch ein Verbundsicherheitsglas gemäß Anspruch 1, bevorzugt in Verbindung mit einem oder mehreren der Merkmale der Unteransprüche, bzw. durch eine
20 schalldämmende Folie nach Anspruch 7 sowie die Verwendung bestimmter Polyalkylenglykole nach Anspruch 8.

Der Kern der vorliegenden Erfindung besteht darin, in einer PVB-Folie zusätzlich zu wenigstens einem ersten, an sich bekannten Weichmacher ein Polyalkylenglykol der Formel $\text{HO}-(\text{R}-\text{O})_n-\text{H}$
25 oder bestimmte davon abgeleitete Derivate als Weichmacher einzusetzen.

Polyalkylenglykol oder bestimmte davon abgeleitete Derivate als Co-Weichmacher in einer PVB-Folie bewirken im Vergleich zu konventionellen Weichmachern eine deutliche Verbesserung der
30 Schalldämmung in den mit einer solchen Folie hergestellten Verbundgläsern. Insbesondere der sonst ausgeprägte Abfall der Schalldämmung im Koinzidenzbereich ist wesentlich schwächer ausgeprägt. Gegenüber einer Standard-Folien-Rezeptur kann der Anteil an Polyvinylbutyral und/oder des jeweils verwendeten
35 Standard-Weichmachers in der PVB-Folie herabgesetzt und durch ein Polyalkylenglykol oder ein davon abgeleitetes Derivat sub-

THIS PAGE BLANK (USPTO)

stituiert werden. Die allgemeine Ausführungsform der Erfindung ist dadurch charakterisiert, daß das Polyalkylenglykol bzw. ein Derivat hiervon in Mischung mit einem oder mehreren konventionellen Weichmachern die Weichmachung des PVB-Harzes bewirkt.

5 In der allgemeinen Ausführungsform der Erfindung macht die Summe der weichmachenden Komponenten (Polyalkylenglykol + konventioneller Weichmacher) 20 bis 50 Gew.-% der Folie aus. In ihrer bevorzugten Ausführungsform beträgt der Gesamt-Weichmachergehalt 25 bis 40 Gew.-% und in der am meisten bevorzugten Form
10 30 bis 35 Gew.-%. Der Anteil des erfindungsgemäßen Polyalkylenglykols an der Folie beläuft sich dabei auf mehr als 5 Gew.-% und im bevorzugten Fall auf mehr als 10 Gew.-%, jeweils bezogen auf die gesamte Folienrezeptur.

15 Polyalkylenglykole im Sinne der Erfindung sind solche, die einen durchschnittlichen Polymerisationsgrad DP von 6 oder höher haben, der allerdings nicht so hoch ist, daß eine in Verbindung mit den übrigen Komponenten der Folie inakzeptable Trübung im Verbundglas eintritt. Als inakzeptabel anzusehen sind bei Mes-
20 sung gemäß ASTM D1003-6 Trübungswerte größer 3% Haze bzw. Abweichungen in ΔL größer 3, die bei einer Vergleichsmessung des mit PVB-Folie laminierten Glaspaares gegen ein Glaspaar ohne PVB-Folie gemäß $L_{\text{(Laminat)}} - L_{\text{(Glaspaar)}} = \Delta L$ nach DIN 5033 festgestellt werden. Bevorzugt liegen die Trübungswerte bei einer Foli-
25 enstärke von 0,76 mm unter 1,5 %, insbesondere unter 1% Haze.

Bei den Polyalkylenglykolen im Sinne der Erfindung kann es sich im einzelnen um Poly(ethylenoxide) einschließlich Blockcopolymeren des Typs $\text{HO}-(\text{CH}_2-\text{CH}_2-\text{O})_n-(\text{CH}_2-\text{CH}(\text{CH}_3)-\text{O})_m-\text{H}$, Poly(propylen-
30 oxide) oder Poly(butylenoxide) sowie davon abgeleitete Derivate handeln, wobei Poly(propylenoxide) wegen der geringeren Wirksamkeit nicht bevorzugt sind. Für die nicht derivatisierten Polyalkylenglykole der Erfindung gilt, daß diese einen durchschnittlichen Polymerisationsgrad - im folgenden DP genannt -
35 von mindestens 6 aufweisen sollten. Beispiele hierfür sind Pluriol® E 600 der Firma BASF mit einem durchschnittlichen Polymerisationsgrad DP von 13,6 sowie Pluriol® P 2000 der Firma BASF mit einem durchschnittlichen Polymerisationsgrad DP von 15,5.

THIS PAGE BLANK (USPTO)

Derivate von Polyalkylenglykolen im Sinne der Erfindung sind solche, bei denen der Wasserstoff von einer der beiden terminalen Hydroxygruppen des Polyalkylenglykols durch einen organischen Rest ersetzt ist. Als Beispiele hierfür können ethoxylierte Fettalkohole, ethoxylierte Fettsäuren wie Ölsäurepolyethylenglykolester oder Monoether des Polyalkylenglykols mit einfachen aliphatischen Alkoholen wie Methanol oder Ethanol dienen. Weitere Beispiele sind Marlophen® NP 6 der Firma Condea, welches aus einer Polyethylenglykol-Anteil mit einem DP von 6 und einem Isononylphenol-Anteil an einem der beiden Hydroxyl-terminierten Enden aufgebaut ist, sowie Marlipal® O 13/100 der Firma Condea, welches aus einem Polyethylenglykol-Anteil mit einem DP von 10 und einem C₁₃-Oxoalkohol aufgebaut ist. Für diese Monoderivate der Polyalkylenglykole gilt, daß der DP des Polyalkylenglykolanteils mindestens 2 betragen muß. Die Obergrenze des DP ergibt sich aus der Verträglichkeit mit den übrigen Komponenten der Folie.

Als Harze für die erfindungsgemäße Folie dienen an sich bekannte teilacetalisierte Polyvinylalkohole, insbesondere Polyvinylbutyral. Die teilacetalisierten Polyvinylalkohole werden in bekannter Weise durch Acetalisierung von hydrolysierten Polyvinylestern hergestellt. Als Aldehyde können beispielsweise Formaldehyd, Acetaldehyd, Propionaldehyd, Butyraldehyd u. dgl., bevorzugt Butyraldehyd, verwendet werden. Das bevorzugte Polyvinylbutyral-Harz enthält 10 bis 25 Gew.-%, vorzugsweise 17 bis 23 Gew.-% und besonders bevorzugt 19 bis 22 Gew.-% Vinylalkoholreste. Das Polyvinylbutyral enthält ggf. zusätzlich 0 bis 20 Gew.-%, bevorzugt 0,5 bis 2,5 Gew.-% Acetatreste. Soweit in dieser Anmeldung allgemein der Begriff Polyvinylbutyral oder PVB verwendet wird, sind hiermit im allgemeinen auch die anderen teilacetalisierten Polyvinylalkohole gemeint.

Neben den oben beschriebenen erfindungsgemäßen Polyalkylenglykolen wird wenigstens ein weiterer Weichmacher verwendet. Bevorzugt ist dieses ein Standard-Weichmacher aus der Gruppe bestehend aus

THIS PAGE BLANK (USPTO)

- Estern von mehrwertigen aliphatischen oder aromatischen Säuren, z.B. Dialkyladipate wie Dihexyladipat, Dioctyladipat, Hexyl-cyclohexyladipat, Mischungen aus Heptyl- und Nonyladipaten, Diisononyladipat, Heptylnonyladipat sowie
5 Ester der Adipinsäure mit cycloaliphatischen Esteralkoholen, Dialkylsebazate wie Dibutylsebazat, Phthalatestern wie Butylbenzylphthalat;
 - Estern von mehrwertigen aliphatischen oder aromatischen Alkoholen oder Oligoetherglykolen mit höchstens vier Ethylenglykoleinheiten mit einem oder mehreren unverzweigten
10 oder verzweigten aliphatischen oder aromatischen Substituenten, wie z.B. Estern von Di-, Tri- oder Tetraglykolen mit linearen oder verzweigten aliphatischen oder cycloaliphatischen Carbonsäuren; Als Beispiele für letztere Gruppe können
15 dienen Diethylenglykol-bis-(2-ethylhexanoat), Triethylenglykol-bis-(2-ethylhexanoat), Triethylenglykol-bis-(2-ethylbutanoat), Tetraethylenglykol-bis-n-heptanoat, Triethylenglykol-bis-n-heptanoat, Triethylenglykol-bis-n-hexanoat.
- 20 Besonders bevorzugt werden als Standard-Weichmacher Di-n-hexyladipat (DHA) und Triethylenglykol-bis-n-heptanoat (3G7).

Zur Herstellung der erfindungsgemäßen PVB-Folie mit verbesserter
25 akustischer Dämpfung wird die flüssige, pastöse oder feste Polyalkylenglykol-Komponente mit dem Standard-Weichmacher gemischt, so daß entweder eine homogene Lösung der Polyalkylenglykol-Komponente im Weichmacher oder bei Unverträglichkeit zwischen Polyalkylenglykol-Komponente und Weichmacher eine Dis-
30 persion entsteht. Die Mischung aus Weichmacher und Polyalkylenglykol-Komponente wird dann zusammen mit dem pulverförmigen Polyvinylbutyral unter Eintrag von Wärme und mechanischer Arbeit zu einer homogenen Folienmasse verarbeitet, welche bevorzugt durch eine Breitschlitzdüse zu einer Folienbahn ausgeformt
35 wird. Als weitere Bestandteile können optional Farbstoffe, Lichtschutzmittel, Stabilisatoren, Verarbeitungshilfsmittel, Wasser sowie Haftungsregulatoren in der Folie enthalten sein.

THIS PAGE BLANK (USPTO)

- 17a -

Der Wassergehalt der Folien wird auf 0,15 bis 0,8 Gew.-%, bevorzugt auf 0,4 bis 0,7 Gew.-%, eingestellt.

Die erfindungsgemäßen Verbundsicherheitsgläser (VSG) weisen neben den verbesserten Dämpfungseigenschaften die die VSG auszeichnenden Eigenschaften wie Bruchfestigkeit, Splitterbindung und Transparenz auf. Beispielsweise ergeben sich bei der Haftungsprüfung zum Glas im Pummel-Test Werte von 8-10 für die Feuer-Seite und 7 für die Zinn-Seite des Glases.

10

Wege zur Ausführung der Erfindung sowie Vergleichsbeispiel

Beispiel 1

Zu 67 Gewichtsteilen eines Polyvinylbutyral-Harzes mit einem Vinylalkohol-Restgehalt (OH-Gruppen-Gehalt berechnet als Vinylalkoholgehalt) von 20,5 Gew.-% und einem Vinylacetat-Restgehalt von 0,7 Gew.-% wurden 22 Gewichtsteile von Triethylenglykol-bis-n-heptanoat (3G7) als Standard-Weichmacher zusammen mit 11 Gewichtsteilen Pluriol® 600, einem nicht-substituierten Poly(ethylenglykol) mit einem mittlerem Molekulargewicht von 600 [g/mol] bzw. einem mittleren Polymerisationsgrad DP von 13,6, sowie 0,15 Gewichtsteilen des UV-Absorbers Tinuvin® P (Hersteller: Fa. Ciba) gegeben. Die Mischung wurde in einem Doppelschnecken-Extruder mit Breitschlitzdüse bei ca. 200°C Massetemperatur zu einem transparenten Film der Dicke 0,76 mm extrudiert.

THIS PAGE BLANK (USPTO)

Patentansprüche

1. Verbundsicherheitsglas, umfassend

- eine erste und eine zweite Glasscheibe sowie
- eine zwischen der ersten und der zweiten Glasscheibe angeordnete Zwischenschicht, wobei die Zwischenschicht einen Wassergehalt von 0,15 bis 0,8 Gew.-% aufweist und enthält:
 - 50 bis 80 Gew.-% teilacetalisierter Polyvinylalkohol
 - 20 bis 50 Gew.-% einer Weichmachermischung, enthaltend
 - 30 bis 70 Gew.-% - gerechnet als Anteil an der Weichmachermischung - eines oder mehrerer Polyalkylenglykole der Gruppe bestehend aus
 - Polyalkylenglykolen der allgemeinen Formel $\text{HO}-(\text{R}-\text{O})_n-\text{H}$ mit $\text{R} = \text{Alkylen}$ und $n > 5$,
 - Blockcopolymeren aus Ethylen- und Propylenglykol der allgemeinen Formel $\text{HO}-(\text{CH}_2-\text{CH}_2-\text{O})_n-(\text{CH}_2-\text{CH}(\text{CH}_3)-\text{O})_m-\text{H}$ mit $n > 2$, $m > 3$ und $(n+m) < 25$,
 - Derivaten von Blockcopolymeren aus Ethylen- und Propylenglykol der allgemeinen Formel $\text{R}_1\text{O}-(\text{CH}_2-\text{CH}_2-\text{O})_n-(\text{CH}_2-\text{CH}(\text{CH}_3)-\text{O})_m-\text{H}$ bzw. $\text{HO}-(\text{CH}_2-\text{CH}_2-\text{O})_n-(\text{CH}_2-\text{CH}(\text{CH}_3)-\text{O})_m-\text{R}_1$ mit $n > 2$, $m > 3$ und $(n+m) < 25$ und R_1 als organischem Rest,
 - Derivate von Polyalkylenglykolen der allgemeinen Formel $\text{R}_1-\text{O}-(\text{R}_2-\text{O})_n-\text{H}$ mit $\text{R}_2 = \text{Alkylen}$ und $n \geq 2$, bei denen der Wasserstoff von einer der beiden terminalen Hydroxygruppen des Polyalkylenglykols durch einen organischen Rest R_1 ersetzt ist
 - wobei der Anteil der Polyalkylenglykole am Gesamtansatz der Zwischenschicht größer als 5 Gew.-% ist.

THIS PAGE BLANK (USPTO)

- 11
12 -

2. Verbundsicherheitsglas nach Anspruch 1, **dadurch gekennzeichnet, daß** die Polyalkylenglykole ausgewählt sind aus der Gruppe bestehend aus
- Polyethylenglykol $\text{HO}-(\text{CH}_2-\text{CH}_2-\text{O})_n-\text{H}$ mit $8 < n < 25$,
 - 5 - Blockcopolymeren aus Ethylen- und Propylenglykol der allgemeinen Formel $\text{HO}-(\text{CH}_2-\text{CH}_2-\text{O})_n-(\text{CH}_2-\text{CH}(\text{CH}_3)-\text{O})_m-\text{H}$ mit $n > 3$, $m > 4$ und $(n+m) < 20$,
 - Derivaten von Blockcopolymeren aus Ethylen- und Propylenglykol der allgemeinen Formel $\text{R}_1\text{O}-(\text{CH}_2-\text{CH}_2-\text{O})_n-$
10 $(\text{CH}_2-\text{CH}(\text{CH}_3)-\text{O})_m-\text{H}$ bzw. $\text{HO}-(\text{CH}_2-\text{CH}_2-\text{O})_n-(\text{CH}_2-\text{CH}(\text{CH}_3)-\text{O})_m-\text{R}_1$ mit $n > 3$, $m > 4$ und $(n+m) < 20$ und R_1 als organischem Rest,
 - Polybutylenglykol $\text{HO}-(\text{CH}_2-\text{CH}_2-\text{CH}_2-\text{CH}_2-\text{O})_n-\text{H}$ mit $4 < n < 18$,
 - 15 - Derivate des Polyethylenglykols der allgemeinen Formel $\text{R}_1-\text{O}-(\text{CH}_2-\text{CH}_2-\text{O})_n-\text{H}$ mit $n \geq 2$ und R_1 als organischem Rest,
 - Derivate des Polybutylenglykols der allgemeinen Formel $\text{R}_1-\text{O}-(\text{CH}_2-\text{CH}_2-\text{CH}_2-\text{CH}_2-\text{O})_n-\text{H}$ mit $n \geq 2$ und R_1 als
20 organischem Rest.
3. Verbundsicherheitsglas nach Anspruch 1 oder 2, **dadurch gekennzeichnet, daß** der Anteil der Polyalkylenglykole am Gesamtansatz der Zwischenschicht größer als 10 Gew.-% und
25 kleiner als 25 Gew.-% ist.
4. Verbundsicherheitsglas nach einem der Ansprüche 1 bis 3, **dadurch gekennzeichnet, daß** als weiterer Weichmacher in der Weichmachermischung wenigstens ein Weichmacher verwendet wird aus der Gruppe bestehend aus
- Estern von mehrwertigen aliphatischen oder aromatischen Säuren,
 - Estern von mehrwertigen aliphatischen oder aromatischen Alkoholen oder Oligoetherglykolen mit höchstens
30 vier Ethereinheiten mit einem oder mehreren unverzweigten oder verzweigten aliphatischen oder aromatischen Substituenten, wie z.B. Dialkyladipat, Dialkylsebazat, Ester von Di-, Tri- oder Tetraglykolen mit
35 linearen oder verzweigten aliphatischen Carbonsäuren.

THIS PAGE BLANK (USPTO)

12
- 13 -

5. Verbundsicherheitsglas nach Anspruch 4, **dadurch gekennzeichnet, daß** als weiterer Weichmacher mit einem Mengenanteil > 10 Gew.-% des Gesamtansatzes wenigstens ein Weichmacher verwendet wird aus der Gruppe bestehend aus Di-n-hexyladipat (DHA) und Triethylenglykol-bis-n-heptanoat (3G7).
6. Verbundsicherheitsglas nach einem der Ansprüche 1 bis 5, **dadurch gekennzeichnet, daß** als Harz ein Polyvinylbutyral mit 19 bis 22 Gew.-% Vinylalkoholrest und 0,5 bis 2,5 Gew.-% Acetatrest verwendet wird.
7. Schalldämmende Folie zur Herstellung von Verbundsicherheitsgläsern, enthaltend:
- 0,15 bis 0,8 Gew.-% Wasser,
 - 50 bis 80 Gew.-% teilacetalisierter Polyvinylalkohol,
 - 20 bis 50 Gew.-% einer Weichmachermischung, enthaltend
 - 30 bis 70 Gew.-% - gerechnet als Anteil an der Weichmachermischung - eines oder mehrerer Polyalkylenglykole der Gruppe bestehend aus
 - Polyalkylenglykolen der allgemeinen Formel $\text{HO}-(\text{R}-\text{O})_n-\text{H}$ mit $\text{R} = \text{Alkylen}$ und $n > 5$,
 - Blockcopolymeren aus Ethylen- und Propylenglykol der allgemeinen Formel $\text{HO}-(\text{CH}_2-\text{CH}_2-\text{O})_n-(\text{CH}_2-\text{CH}(\text{CH}_3)-\text{O})_m-\text{H}$ mit $n > 2$, $m > 3$ und $(n+m) < 25$,
 - Derivaten von Blockcopolymeren aus Ethylen- und Propylenglykol der allgemeinen Formel $\text{R}_1\text{O}-(\text{CH}_2-\text{CH}_2-\text{O})_n-(\text{CH}_2-\text{CH}(\text{CH}_3)-\text{O})_m-\text{H}$ bzw. $\text{HO}-(\text{CH}_2-\text{CH}_2-\text{O})_n-(\text{CH}_2-\text{CH}(\text{CH}_3)-\text{O})_m-\text{R}_1$ mit $n > 2$, $m > 3$ und $(n+m) < 25$ und R_1 als organischem Rest,
 - Derivate von Polyalkylenglykolen der allgemeinen Formel $\text{R}_1-\text{O}-(\text{R}_2-\text{O})_n-\text{H}$ mit $\text{R}_2 = \text{Alkylen}$ und $n \geq 2$, bei denen der Wasserstoff von einer der beiden terminalen Hydroxygruppen des Polyalkylenglykols durch einen organischen Rest R_1 ersetzt ist,
 - wobei der Anteil der Polyalkylenglykole am Gesamtansatz der Zwischenschicht größer als 5 Gew.-% ist.

THIS PAGE BLANK (USPTO)

13
- 14 -

8. Verwendung eines oder mehrerer Polyalkylenglykole der Gruppe bestehend aus

- Polyalkylenglykolen der allgemeinen Formel
5 $\text{HO}-(\text{R}-\text{O})_n-\text{H}$ mit $\text{R} = \text{Alkylen}$ und $n > 5$,
- Blockcopolymeren aus Ethylen- und Propylenglykol der allgemeinen Formel $\text{HO}-(\text{CH}_2-\text{CH}_2-\text{O})_n-(\text{CH}_2-\text{CH}(\text{CH}_3)-\text{O})_m-\text{H}$ mit $n > 2$, $m > 3$ und $(n+m) < 25$,
- Derivaten von Blockcopolymeren aus Ethylen- und Propylenglykol der allgemeinen Formel $\text{R}_1\text{O}-(\text{CH}_2-\text{CH}_2-\text{O})_n-(\text{CH}_2-\text{CH}(\text{CH}_3)-\text{O})_m-\text{H}$ bzw. $\text{HO}-(\text{CH}_2-\text{CH}_2-\text{O})_n-(\text{CH}_2-\text{CH}(\text{CH}_3)-\text{O})_m-\text{R}_1$ mit $n > 2$, $m > 3$ und $(n+m) < 25$ und R_1 als organischem Rest,
- Derivate von Polyalkylenglykolen der allgemeinen Formel $\text{R}_1-\text{O}-(\text{R}_2-\text{O})_n-\text{H}$ mit $\text{R}_2 = \text{Alkylen}$ und $n \geq 2$, bei denen der Wasserstoff von einer der beiden terminalen Hydroxygruppen des Polyalkylenglykols durch einen organischen Rest R_1 ersetzt ist,

20 als ein die Schalldämmung erhöhender Zusatz in aus weichgemachtem teilacetalisierten Polyvinylalkohol-Harz hergestellten Folien mit einem Wassergehalt von 0,15 bis 0,8 Gew.-% für Verbundsicherheitsgläser, wobei die Schalldämmung des Verbundsicherheitsglases durch den Zusatz der Polyalkylenglykole bei der Koinzidenzfrequenz im Bereich von
25 1.000 bis 3.500 Hz um mindestens 2 dB, gemessen nach DIN EN ISO 717, erhöht wird.

THIS PAGE BLANK (USPTO)

WO-A

- 12 -

Patent claims

1. Laminated safety glass, comprising
- a first and a second pane of glass, and also,
 - arranged between the first and the second pane of glass, an intermediate layer, where the intermediate layer has a water content of from 0.15 to 0.8% by weight and comprises:
 - from 50 to 80% by weight of partially acetalized polyvinyl alcohol
 - from 20 to 50% by weight of a plasticizer mixture, comprising
 - from 30 to 70% by weight - calculated as proportion of the plasticizer mixture - of one or more polyalkylene glycols selected from the group consisting of
 - polyalkylene glycols of the general formula $\text{HO}-(\text{R}-\text{O})_n-\text{H}$, where $\text{R} = \text{alkylene}$ and $n > 5$,
 - block copolymers of ethylene glycol and propylene glycol having the general formula $\text{HO}-(\text{CH}_2-\text{CH}_2-\text{O})_n-(\text{CH}_2-\text{CH}(\text{CH}_3)-\text{O})_m-\text{H}$, where $n > 2$, $m > 3$, and $(n+m) < 25$,
 - derivatives of block copolymers of ethylene glycol and propylene glycol having the general formula $\text{R}_1\text{O}-(\text{CH}_2-\text{CH}_2-\text{O})_n-(\text{CH}_2-\text{CH}(\text{CH}_3)-\text{O})_m-\text{H}$ or $\text{HO}-(\text{CH}_2-\text{CH}_2-\text{O})_n-(\text{CH}_2-\text{CH}(\text{CH}_3)-\text{O})_m-\text{R}_1$, where $n > 2$, $m > 3$, and $(n+m) < 25$ and R_1 as organic radical,
 - derivatives of polyalkylene glycols of the general formula $\text{R}_1-\text{O}-(\text{R}_2-\text{O})_n-\text{H}$, where $\text{R}_2 = \text{alkylene}$ and $n \geq 2$, in which the hydrogen of one of the two terminal hydroxyl groups of the polyalkylene glycol has been replaced by an organic radical R_1 ,

THIS PAGE BLANK (USPTO)

WO-A

- 13 -

- the proportion of the polyalkylene glycols in the total mixture for the intermediate layer being greater than 5% by weight.

- 5 2. Laminated safety glass according to claim 1, **characterized in that** the polyalkylene glycols have been selected from the group consisting of
- polyethylene glycol $\text{HO}-(\text{CH}_2-\text{CH}_2-\text{O})_n-\text{H}$, where $8 < n < 25$,
 - 10 - block copolymers of ethylene glycol and propylene glycol having the general formula $\text{HO}-(\text{CH}_2-\text{CH}_2-\text{O})_n-(\text{CH}_2-\text{CH}(\text{CH}_3)-\text{O})_m-\text{H}$, where $n > 3$, $m > 4$, and $(n+m) < 20$,
 - derivatives of block copolymers of ethylene glycol and propylene glycol having the general
15 formula $\text{R}_2\text{O}-(\text{CH}_2-\text{CH}_2-\text{O})_n-(\text{CH}_2-\text{CH}(\text{CH}_3)-\text{O})_m-\text{H}$ or $\text{HO}-(\text{CH}_2-\text{CH}_2-\text{O})_n-(\text{CH}_2-\text{CH}(\text{CH}_3)-\text{O})_m-\text{R}_1$, where $n > 3$, $m > 4$, and $(n+m) < 20$ and R_1 as organic radical,
 - polybutylene glycol $\text{HO}-(\text{CH}_2-\text{CH}_2-\text{CH}_2-\text{CH}_2-\text{O})_n-\text{H}$,
20 where $4 < n < 18$,
 - derivatives of the polyethylene glycol of the general formula $\text{R}_1-\text{O}-(\text{CH}_2-\text{CH}_2-\text{O})_n-\text{H}$, where $n \geq 2$ and R_1 is an organic radical,
 - derivatives of the polybutylene glycol of the
25 general formula $\text{R}_1-\text{O}-(\text{CH}_2-\text{CH}_2-\text{CH}_2-\text{CH}_2-\text{O})_n-\text{H}$, where $n \geq 2$ and R_1 is an organic radical.
3. Laminated safety glass according to claim 1 or 2, **characterized in that** the proportion of the
30 polyalkylene glycols in the total mixture for the intermediate layer is greater than 10% by weight and less than 25% by weight.
4. Laminated safety glass according to any of
35 claims 1 to 3, **characterized in that** at least one plasticizer selected from the group consisting of

THIS PAGE BLANK (USPTO)

WO-A

- 14 -

- esters of polybasic aliphatic or aromatic acids,
- polyhydric aliphatic or aromatic alcohols or oligoether glycols having not more than four ether units with one or more unbranched or
- 5 branched aliphatic or aromatic substituents, e.g. dialkyl adipate, dialkyl sebacate, esters of di-, tri- or tetraglycols with linear or branched aliphatic carboxylic acids
- 10 is used as further plasticizer in the plasticizer mixture.

- 5. Laminated safety glass according to claim 4, **characterized in that** at least one plasticizer selected from the group consisting of di-n-hexyl
- 15 adipate (DHA) and triethylene glycol bis-n-heptanoate (3G7) is used as further plasticizer at a proportion > 10% by weight of the total mixture.

- 20 6. Laminated safety glass according to any of claims 1 to 5, **characterized in that** a polyvinyl butyral having from 19 to 22% by weight of vinyl alcohol radical and from 0.5 to 2.5% by weight of acetate radical is used as resin.
- 25 7. Sound-insulation film for producing laminated safety glass, comprising:
 - from 0.15 to 0.8% by weight of water,
 - from 50 to 80% by weight of partially acetalized
 - 30 polyvinyl alcohol,
 - from 20 to 50% by weight of a plasticizer mixture, comprising
 - from 30 to 70% by weight - calculated as proportion of the plasticizer mixture - of one
 - 35 or more polyalkylene glycols selected from the group consisting of

THIS PAGE BLANK (USPTO)

WO-A

- 15 -

- polyalkylene glycols of the general formula $\text{HO}-(\text{R}-\text{O})_n-\text{H}$, where R = alkylene and $n > 5$,
 - block copolymers of ethylene glycol and propylene glycol having the general formula $\text{HO}-(\text{CH}_2-\text{CH}_2-\text{O})_n-(\text{CH}_2-\text{CH}(\text{CH}_3)-\text{O})_m-\text{H}$,
5 where $n > 2$, $m > 3$, and $(n+m) < 25$,
 - derivatives of block copolymers of ethylene glycol and propylene glycol having the general formula $\text{R}_1\text{O}-(\text{CH}_2-\text{CH}_2-\text{O})_n-(\text{CH}_2-\text{CH}(\text{CH}_3)-\text{O})_m-\text{H}$ or
10 $\text{HO}-(\text{CH}_2-\text{CH}_2-\text{O})_n-(\text{CH}_2-\text{CH}(\text{CH}_3)-\text{O})_m-\text{R}_1$, where $n > 2$, $m > 3$, and $(n+m) < 25$ and R_1 as organic radical,
 - derivatives of polyalkylene glycols of the general formula $\text{R}_1-\text{O}-(\text{R}_2-\text{O})_n-\text{H}$, where
15 R_2 = alkylene and $n \geq 2$, in which the hydrogen of one of the two terminal hydroxyl groups of the polyalkylene glycol has been replaced by an organic radical R_1 ,
20
 - the proportion of the polyalkylene glycols in the total mixture for the intermediate layer being greater than 5% by weight.
- 25 8. Use of one or more polyalkylene glycols selected from the group consisting of
- polyalkylene glycols of the general formula $\text{HO}-(\text{R}-\text{O})_n-\text{H}$, where R = alkylene and $n > 5$,
 - block copolymers of ethylene glycol and propylene glycol having the general formula $\text{HO}-(\text{CH}_2-\text{CH}_2-\text{O})_n-(\text{CH}_2-\text{CH}(\text{CH}_3)-\text{O})_m-\text{H}$, where $n > 2$, $m > 3$, and $(n+m) < 25$,
 - derivatives of block copolymers of ethylene glycol and propylene glycol having the general
30 formula $\text{R}_1\text{O}-(\text{CH}_2-\text{CH}_2-\text{O})_n-(\text{CH}_2-\text{CH}(\text{CH}_3)-\text{O})_m-\text{H}$ or
35

THIS PAGE BLANK (USPTO)

WO-A

- 16 -

HO-(CH₂-CH₂-O)_n-(CH₂-CH(CH₃)-O)_m-R₁, where n > 2,
m > 3, and (n+m) < 25 and R₁ as organic radical,
- derivatives of polyalkylene glycols of the
general formula R₁-O-(R₂-O)_n-H, where
5 R₂ = alkylene and n ≥ 2, in which the hydrogen of
one of the two terminal hydroxyl groups of the
polyalkylene glycol has been replaced by an
organic radical R₁,

as an additive improving sound insulation in films
10 produced from plasticized partially acetalized
polyvinyl alcohol resin and having a water content
of from 0.15 to 0.8% by weight for laminated
safety glass, where the sound insulation of the
laminated safety glass is increased by the
15 addition of the polyalkylene glycols by at least
2 dB, measured to DIN EN ISO 717, in the
coincidence frequency region from 1000 to 3500 Hz.



THIS PAGE BLANK (USPTO)

Verbundsicherheitsglas sowie PVB-Folie zu seiner Herstellung**Technisches Gebiet**

Die Erfindung betrifft ein Verbundsicherheitsglas mit verbesserten akustischen Eigenschaften sowie eine PVB-Folie zu ihrer Herstellung. Verbundsicherheitsgläser bestehen im allgemeinen aus zwei Glasscheiben und einer die Glasscheiben verbindenden Klebfolie. Als Klebfolie wird ganz überwiegend eine Folie aus weichmacherhaltigen teilacetalisierten Polyvinylalkoholen, insbesondere aus Polyvinylbutyral (PVB) verwendet. Die eingangs genannten Verbundsicherheitsgläser werden beispielsweise als Windschutzscheiben im Kraftfahrzeugbereich sowie als Verglasung im Baubereich eingesetzt.

Als Weichmacher für PVB finden kommerziell überwiegend aliphatische Diester des Tri- bzw. Tetraethylenglykols Verwendung. Hierzu zählen 3GH, 3G7, 3G8 sowie 4G7, bei denen die vorangestellte Ziffer auf die Anzahl n der Wiederholungseinheit $H-(O-CH_2-CH_2)_n-OH$ des Oligoethylenglykol-Anteils und H auf 2-Ethylbutyrat, 7 auf n -Heptanoat und 8 auf 2-Ethylhexanoat verweist. Weitere bekannte Weichmacher für Polyvinylbutyral sind u. A. Dialkyladipate mit aliphatischen bzw. cycloaliphatischen Esteranteilen, Dialkylsebazate, Triorganophosphate, Triorganophosphite oder Phthalatweichmacher wie Benzylbutylphthalat.

Verbundsicherheitsgläser weisen eine im Vergleich zu monolithischen Glasscheiben gleicher Gesamtstärke höhere akustische Dämpfung auf. Dieses ist darauf zurückzuführen, daß die PVB-Folie aufgrund ihrer Elastizität die mechanische Kopplung der Einzelscheiben vermindert und so die Übertragung von Schwingungen der der Schallquelle zugewandten Scheibenseite auf die abgewandte Scheibenseite erschwert.

Die Effizienz der Dämpfung einer Verglasung läßt sich als Funktion der Frequenz gemäß DIN 52210 bzw. DIN EN ISO 717 bestimmen und wird dann durch das bewertete Schalldämmmaß R_w ausgedrückt, welches einem gewichteten Mittelwert über den bauakustisch relevanten Frequenzbereich von 100 Hz - 3150 Hz entspricht. Hierbei steht ein höherer Wert R_w für eine bessere akustische Dämpfung.

fung der Verglasung. Beispielsweise läßt sich mit einer herkömmlichen Verbundglasscheibe des Aufbaus 3 mm Glas/0,38 mm PVB-Folie/3 mm Glas ein R_w von 33 dB erzielen, während für eine monolithische Scheibe der Dicke 6 mm 32 dB gemessen werden.

5

Das Dämpfungsverhalten der bekannten Verbundsicherheitsgläser ist jedoch für viele Anwendungszwecke nicht ausreichend. Mißt man bei Raumtemperatur die akustische Dämpfung eines Verbundsicherheitsglases gemäß dem Stand der Technik mit einer herkömmlichen PVB-Folie als Zwischenschicht, so steigt die Dämpfung mit steigender Frequenz in weiten Bereichen stetig und angenähert linear an, wobei jedoch insbesondere im Frequenzbereich zwischen ca. 1.000 und 3.500 Hz ein deutlicher Einbruch der Dämpfung (relatives Minimum der Dämpfung, Koinzidenzeinbruch) zu beobachten ist. Die Lage dieses Koinzidenzeinbruchs ist abhängig von der Dicke der verwendeten Gläser. Bei Verwendung von Glasscheiben einer Dicke von je 4 mm liegt der Koinzidenzeinbruch etwa im Bereich von 1.250 bis 2500 Hz, bei Verwendung dünnerer Scheiben verschiebt sich der Bereich des Dämpfungseinbruchs zu höheren Frequenzen, während dieser Bereich bei Verwendung dickerer Glasscheiben zu niedrigeren Frequenzen hin verschoben wird. Die Frequenz, bei der die Dämpfungskurve im Bereich des Koinzidenzeinbruchs das relative Minimum durchläuft, wird im folgenden Koinzidenzfrequenz genannt.

25

Stand der Technik

Es wurden in der Vergangenheit bereits Vorschläge gemacht, das akustische Dämpfungsverhalten von Verbundsicherheitsgläsern zu verbessern. Aus der US 5,773,102 (= EP 0 763 420 A1) ist ein Verbundsicherheitsglas bekannt, bei dem zur Verbesserung der akustischen Eigenschaften neben einer Standard-PVB-Folie eine spezielle, akustisch wirksame Folie eingesetzt wird.

30

In der DE 197 05 586 C1 und der EP 0 844 075 A1 wird für eine schalldämpfende Verbundglasscheibe für Kraftfahrzeuge ebenfalls eine mehrschichtige thermoplastische Zwischenschicht vorgeschlagen. Der Verbund besteht aus einer viskoelastischen Acrylpolymerfolie, die auf beiden Seiten unter Zwischenschaltung je-

35

- 3 -

weils einer 0,01 bis 0,1 mm dicken Folie aus Polyethylen-
terephthalat und jeweils einer thermoplastischen Klebefolie
aus Polyvinylbutyral mit zwei Silikatglasscheiben verbunden
ist.

- 5 Solche mehrschichtigen Zwischenschichten sind jedoch aufwendig
in der Herstellung und häufig auch in der Weiterverarbeitung.

Aus der DE 24 61 775 A1 ist schließlich eine Verbundglasscheibe
bekannt, die durch Zugabe sehr hoher Mengen an Standardweichma-
cher, hier Flexol, eine zwar verbesserte Schalldämmung erzielt,
10 wobei die verwendete Weichmachermenge jedoch zu erhöhter Kleb-
rigkeit führt, wodurch die Folie kaum mit herkömmlichen Anlagen
weiterzuverarbeiten ist.

Aufgabe

- 15 Aufgabe der vorliegenden Erfindung ist es daher, eine möglichst
einschichtige Zwischenfolie für Verbundgläser auf der Basis von
PVB zur Verfügung zu stellen, die bei weitgehend unveränderter
Verarbeitbarkeit eine bei Raumtemperatur verbesserte Schalldäm-
mung der daraus hergestellten Verbundgläser ermöglicht. Ein
20 weiteres Anliegen der Erfindung ist es, Verbundgläser mit einer
Zwischenschicht auf der Basis von PVB mit bei Raumtemperatur
verbesserter Schalldämmung zur Verfügung zu stellen.

Darstellung der Erfindung

- 25 Die Erfindung löst diese Aufgabe durch ein Verbundsicherheits-
glas gemäß Anspruch 1, bevorzugt in Verbindung mit einem oder
mehreren der Merkmale der Unteransprüche, bzw. durch eine
schalldämmende Folie nach Anspruch 7.

Der Kern der vorliegenden Erfindung besteht darin, in einer
30 PVB-Folie zusätzlich zu wenigstens einem ersten, an sich be-
kannten Weichmacher ein Polyalkylenglykol der Formel $\text{HO}-(\text{R}-\text{O})_n-\text{H}$
oder davon abgeleitete Derivate als Weichmacher einzusetzen.

Polyalkylenglykol oder davon abgeleitete Derivate als Co-
Weichmacher in einer PVB-Folie bewirken im Vergleich zu konven-
35 tionellen Weichmachern eine deutliche Verbesserung der Schall-
dämmung in den mit einer solchen Folie hergestellten Verbund-

gläsern. Insbesondere der sonst ausgeprägte Abfall der Schall-
dämmung im Koinzedenzbereich ist wesentlich schwächer ausge-
prägt. Gegenüber einer Standard-Folien-Rezeptur kann der Anteil
an Polyvinylbutyral und/oder des jeweils verwendeten Standard-
5 Weichmachers in der PVB-Folie herabgesetzt und durch ein Po-
lyalkylenglykol oder ein davon abgeleitetes Derivat substitu-
iert werden. Die allgemeine Ausführungsform der Erfindung ist
dadurch charakterisiert, daß das Polyalkylenglykol bzw. ein De-
rivat hiervon in Mischung mit einem oder mehreren konventionel-
10 len Weichmachern die Weichmachung des PVB-Harzes bewirkt.

In der allgemeinen Ausführungsform der Erfindung macht die Sum-
me der weichmachenden Komponenten (Polyalkylenglykol + konven-
tioneller Weichmacher) 20 bis 50 Gew.-% der Folie aus. In ihrer
bevorzugten Ausführungsform beträgt der Gesamt-Weichmacher-
15 gehalt 25 bis 40 Gew.-% und in der am meisten bevorzugten Form
30 bis 35 Gew.-%. Der Anteil des erfindungsgemäßen Polyalky-
lenglykols an der Folie beläuft sich dabei im bevorzugten Fall
auf mehr als 5 Gew.-% und im am meisten bevorzugten Fall auf
mehr als 10 Gew.-%, jeweils bezogen auf die gesamte Folienre-
20 zeptur.

Polyalkylenglykole im Sinne der Erfindung sind solche, die ei-
nen durchschnittlichen Polymerisationsgrad DP von 6 oder höher
haben, der allerdings nicht so hoch ist, daß eine in Verbindung
25 mit den übrigen Komponenten der Folie inakzeptable Trübung im
Verbundglas eintritt. Als inakzeptabel anzusehen sind bei Mes-
sung gemäß ASTM D1003-6 Trübungswerte größer 3% Haze bzw. Ab-
weichungen in ΔL größer 3, die bei einer Vergleichsmessung des
mit PVB-Folie laminierten Glaspaars gegen ein Glaspaar ohne
30 PVB-Folie gemäß $L_{\text{(Laminat)}} - L_{\text{(Glaspaar)}} = \Delta L$ nach DIN 5033 festgestellt
werden. Bevorzugt liegen die Trübungswerte bei einer Foli-
enstärke von 0,76 mm unter 1,5 %, insbesondere unter 1% Haze.

Bei den Polyalkylenglykolen im Sinne der Erfindung kann es sich
35 im einzelnen um Poly(ethylenoxide) einschließlich Blockcopoly-
meren des Typs $\text{HO}-(\text{CH}_2-\text{CH}_2-\text{O})_n-(\text{CH}_2-\text{CH}(\text{CH}_3)-\text{O})_m-\text{H}$, Poly(propylen-
oxide) oder Poly(butylenoxide) sowie davon abgeleitete Derivate
handeln, wobei Poly(propylenoxide) wegen der geringeren Wirk-

- 5 -

samkeit nicht bevorzugt sind. Für die nicht derivatisierten Polyalkylenglykole der Erfindung gilt, daß diese einen durchschnittlichen Polymerisationsgrad - im folgenden DP genannt - von mindestens 6 aufweisen sollten. Beispiele hierfür sind Pluriol[®] E 600 der Firma BASF mit einem durchschnittlichen Polymerisationsgrad DP von 13,6 sowie Pluriol[®] P 2000 der Firma BASF mit einem durchschnittlichen Polymerisationsgrad DP von 15,5.

Derivate von Polyalkylenglykolen im Sinne der Erfindung sind solche, bei denen der Wasserstoff von mindestens einer der beiden terminalen Hydroxygruppen des Polyalkylenglykols durch einen organischen Rest ersetzt ist. Als Beispiele hierfür können ethoxylierte Fettalkohole, ethoxylierte Fettsäuren wie Ölsäurepolyethylenglykolester oder Monoether des Polyalkylenglykols mit einfachen aliphatischen Alkoholen wie Methanol oder Ethanol dienen. Weitere Beispiele sind Marlophen[®] NP 6 der Firma Condea, welches aus einer Polyethylenglykol-Anteil mit einem DP von 6 und einem Isononylphenol-Anteil an einem der beiden Hydroxyl-terminierten Enden aufgebaut ist, sowie Marlipal[®] O 13/100 der Firma Condea, welches aus einem Polyethylenglykol-Anteil mit einem DP von 10 und einem C₁₃-Oxoalkohol aufgebaut ist. Für diese Monoderivate der Polyalkylenglykole gilt, daß der DP des Polyalkylenglykolanteils mindestens 2 betragen muß. Die Obergrenze des DP ergibt sich aus der Verträglichkeit mit den übrigen Komponenten der Folie.

Ist der Wasserstoff beider terminaler Hydroxygruppen des Polyalkylenglykolanteils durch einen organischen Rest ersetzt, muß der Polyalkylenglykolanteil ein DP von mindestens 6 aufweisen. Ein Beispiel hierfür ist PEG-400-di(2-ethylhexansäure)ester, ein Poly(ethylenglykol)-di(2-ethylhexansäure)ester, dessen Poly(ethylenglykol)-Anteil ein mittleres Molekulargewicht von 400 [g/mol] aufweist.

Als Harze für die erfindungsgemäße Folie dienen an sich bekannte teilacetalisierte Polyvinylalkohole, insbesondere Polyvinylbutyral. Die teilacetalisierten Polyvinylalkohole werden in bekannter Weise durch Acetalisierung von hydrolysierten Polyvinylestern hergestellt. Als Aldehyde können beispielsweise Form-

- 6 -

aldehyd, Acetaldehyd, Propionaldehyd, Butyraldehyd u. dgl., bevorzugt Butyraldehyd, verwendet werden. Das bevorzugte Polyvinylbutyral-Harz enthält 10 bis 25 Gew.-%, vorzugsweise 17 bis 23 Gew.-% und besonders bevorzugt 19 bis 22 Gew.-% Vinylalkoholreste. Das Polyvinylbutyral enthält ggf. zusätzlich 0 bis 20 Gew.-%, bevorzugt 0,5 bis 2,5 Gew.-% Acetatreste. Soweit in dieser Anmeldung allgemein der Begriff Polyvinylbutyral oder PVB verwendet wird, sind hiermit im allgemeinen auch die anderen teilacetalisierten Polyvinylalkohole gemeint.

10

Neben den oben beschriebenen erfindungsgemäßen Polyalkylenglykolen wird wenigstens ein weiterer Weichmacher verwendet. Bevorzugt ist dieses ein Standard-Weichmacher aus der Gruppe bestehend aus

15

- Estern von mehrwertigen aliphatischen oder aromatischen Säuren, z.B. Dialkyladipate wie Dihexyladipat, Dioctyladipat, Hexyl-cyclohexyladipat, Mischungen aus Heptyl- und Nonyladipaten, Diisononyladipat, Heptylnonyladipat sowie Ester der Adipinsäure mit cycloaliphatischen Esteralkoholen, Dialkylsebazate wie Dibutylsebazat, Phthalatestern wie Butylbenzylphthalat;

20

- Estern von mehrwertigen aliphatischen oder aromatischen Alkoholen oder Oligoetherglykolen mit höchstens vier Ethylenglykoleinheiten mit einem oder mehreren unverzweigten oder verzweigten aliphatischen oder aromatischen Substituenten, wie z.B. Estern von Di-, Tri- oder Tetraglykolen mit linearen oder verzweigten aliphatischen oder cycloaliphatischen Carbonsäuren; Als Beispiele für letztere Gruppe können dienen Diethylenglykol-bis-(2-ethylhexanoat), Triethylenglykol-bis-(2-ethylhexanoat), Triethylenglykol-bis-(2-ethylbutanoat), Tetraethylenglykol-bis-n-heptanoat, Triethylenglykol-bis-n-heptanoat, Triethylenglykol-bis-n-hexanoat.

25

30

35 Besonder bevorzugt werden als Standard-Weichmacher Di-n-hexyladipat (DHA) und Triethylenglykol-bis-n-heptanoat (3G7).

Zur Herstellung der erfindungsgemäßen PVB-Folie mit verbesserter akustischer Dämpfung wird die flüssige, pastöse oder feste

- 7 -

Polyalkylenglykol-Komponente mit dem Standard-Weichmacher gemischt, so daß entweder eine homogene Lösung der Polyalkylenglykol-Komponente im Weichmacher oder bei Unverträglichkeit zwischen Polyalkylenglykol-Komponente und Weichmacher eine Dispersion entsteht. Die Mischung aus Weichmacher und Polyalkylenglykol-Komponente wird dann zusammen mit dem pulverförmigen Polyvinylbutyral unter Eintrag von Wärme und mechanischer Arbeit zu einer homogenen Folienmasse verarbeitet, welche bevorzugt durch eine Breitschlitzdüse zu einer Folienbahn ausgeformt wird. Als weitere Bestandteile können optional Farbstoffe, Lichtschutzmittel, Stabilisatoren, Verarbeitungshilfsmittel, Wasser sowie Haftungsregulatoren in der Folie enthalten sein.

Der Wassergehalt der Folien wird bevorzugt auf 0,15 bis 0,8 Gew.-%, insbesondere auf 0,4 bis 0,7 Gew.-%, eingestellt.

Die erfindungsgemäßen Verbundsicherheitsgläser (VSG) weisen neben den verbesserten Dämpfungseigenschaften die die VSG auszeichnenden Eigenschaften wie Bruchfestigkeit, Splitterbindung und Transparenz auf. Beispielsweise ergeben sich bei der Haftungsprüfung zum Glas im Pummel-Test Werte von 8-10 für die Feuer-Seite und 7 für die Zinn-Seite des Glases.

Wege zur Ausführung der Erfindung sowie Vergleichsbeispiel

Beispiel 1

Zu 67 Gewichtsteilen eines Polyvinylbutyral-Harzes mit einem Vinylalkohol-Restgehalt (OH-Gruppen-Gehalt berechnet als Vinylalkoholgehalt) von 20,5 Gew.-% und einem Vinylacetat-Restgehalt von 0,7 Gew.-% wurden 22 Gewichtsteile von Triethylenglykol-bis-n-heptanoat (3G7) als Standard-Weichmacher zusammen mit 11 Gewichtsteilen Pluriol® 600, einem nicht-substituierten Poly(ethylenglykol) mit einem mittlerem Molekulargewicht von 600 [g/mol] bzw. einem mittleren Polymerisationsgrad DP von 13,6, sowie 0,15 Gewichtsteilen des UV-Absorbers Tinuvin® P (Hersteller: Fa. Ciba) gegeben. Die Mischung wurde in einem Doppelschnecken-Extruder mit Breitschlitzdüse bei ca. 200°C Massetemperatur zu einem transparenten Film der Dicke 0,76 mm extrudiert.

Die PVB-Folie wurden anschließend durch gleichzeitiges Erhitzen und Verpressen in einem Autoklav mit jeweils zwei Glasscheiben der Abmessungen 1480x1230x4 mm zu Verbundglasscheiben laminiert. Für diese Scheiben wurde gemäß DIN EN ISO 717 das bewertete Schalldämmmaß R_w bestimmt, wobei ein Frequenzband von 50 Hz bis 5000 Hz im Terzabstand durchfahren wurde. Die Temperatur des Prüfkörpers und des Prüfraumes betrug 21 °C. Ergebnisse dieser Messungen sind in Diagramm 1 in Form einer Dämpfungskurve dargestellt, wobei höhere bei einer bestimmten Frequenz gemessene Werte eine bessere Dämpfung bedeuten.

Vergleichsbeispiel (Beispiel 2)

Für die im Diagramm 1 zum Vergleich aufgeführte Dämpfungskurve eines Verbundglases mit dem Aufbau 4 mm Glas/0,76 Standard-PVB/4 mm Glas mit 26 Gew.-% 3G7 als Weichmacher läßt sich ein Einbruch der Dämpfung zwischen 1000 und 2000 Hz gut erkennen. Dieses Phänomen ist als Koinzidenzeinbruch bekannt und stellt eine - im Hinblick auf Schallschutz - charakteristische Schwachstelle von Verbundgläsern dar, die mit Standard-PVB hergestellt sind.

Das relative Minimum der Schalldämmung im Koinzidenzbereich liegt bei ca. 1.900 Hz, d. h., die Koinzidenzfrequenz beträgt 1.900 Hz. Die Dämpfung liegt bei dieser Frequenz mit ca. 31,5 dB um mehr als 5 dB unterhalb des entsprechenden Wertes bei der Folie gemäß Beispiel 1.

Beispiele 3 bis 7

Wie in Beispiel 1 wurden die in der nachfolgenden Tabelle angeführten Beispiele 3 bis 7 durchgeführt. Die Schalldämmkurven für die Beispiele 3 bis 7 lagen dabei auf ähnlichem Niveau wie die gemäß Beispiel 1.

Beispiel/ Bestandteil	1	2 (Vergleich)	3	4	5	6	7
Polyvinylbutyral	67	74	67	67	67	67	67
DHA ⁽¹⁾	-	-	-	22	-	22	22
3G7 ⁽²⁾	22	26	22	-	16.5	-	-
Pluriol® 600 ⁽³⁾	11	-	-	11	-	-	-

- 9 -

Beispiel/ Bestandteil	1	2 (Vergleich)	3	4	5	6	7
Marlophen® NP 12 ⁽⁴⁾	-	-	11	-	16,5		-
Marlophen® NP 6 ⁽⁵⁾	-	-	-	-	-		11
Poly-THF 650 ⁽⁶⁾						11	
UV-Absorber	0,15	0,15	0,15	0,15	0,15	0,15	0,15
Eigenschaft							
Foliendicke [mm]	0,76	0,76	0,76	0,76	0,76	0,76	0,76
Trübung ΔL	-0,32			0,01		0,26	-0,16
R _w ⁽⁷⁾	37,0	35,4	36,4	37,3	36,1	36,2	36,9

(1) Di-n-hexyladipat

(2) Triethylenglykol-bis-n-heptanoat

(3) Poly(ethylenglykol) mit einem mittlerem Molekulargewicht von 600 [g/mol]

(4) Einseitig substituiertes PEG mit einem Polyethylenglykol-Anteil mit einem DP von 12 und einem Isononylphenol-Anteil an einem der beiden Hydroxyl-terminierten Enden.

(5) Beidseitig substituiertes PEG mit einem Polyethylenglykol-Anteil mit einem DP von 6 und einem Isononylphenol-Anteil an einem der beiden Hydroxyl-terminierten Enden.

(6) Polybutylenglykol mit einem DP von ca. 9 der Firma BASF.

(7) Bewertetes Schalldämmmaß in dB bei Messung gemäß DIN EN ISO 717.

Für sämtliche Folien der Beispiele werden im Verbundglas Trübungswerte gefunden, die niedrig und vergleichbar mit denjenigen eines Verbundglases sind, welches mit einer auf bekannte Weise weichgemachten PVB-Folie laminiert ist. Trotz des im Vergleich zum Vergleichsbeispiel 2 von 26 Gew.-% auf 33 Gew.-% erhöhten Gesamtweichmachergehalt wurde die Handhabbarkeit der Folie, insbesondere ihre Klebrigkeit, nicht nennenswert verschlechtert. Im Vergleich dazu wäre eine Folie mit 33 Gew.-% Gehalt an 3G7 wegen der hohen Klebrigkeit - durch Ausschwitzen von Weichmacher - kaum mit herkömmlichen Anlagen weiterzuverarbeiten.

Patentansprüche

1. Verbundsicherheitsglas, umfassend

- eine erste und eine zweite Glasscheibe sowie
- eine zwischen der ersten und der zweiten Glasscheibe
5 angeordnete Zwischenschicht, wobei die Zwischenschicht
enthält:
 - 50 bis 80 Gew.-% PVB (teilacetalisierter Polyvinylalkohol)
 - 20 bis 50 Gew.-% einer Weichmachermischung, enthal-
10 tend
 - 30 bis 70 Gew.-% - gerechnet als Anteil an der Weichmachermischung - eines oder mehrerer Polyalkylenglykole der Gruppe bestehend aus
 - Polyalkylenglykolen der allgemeinen Formel
15 $\text{HO}-(\text{R}-\text{O})_n-\text{H}$ mit $\text{R} = \text{Alkylen}$ und $n > 5$,
 - Blockcopolymeren aus Ethylen- und Propylenglykol der allgemeinen Formel $\text{HO}-(\text{CH}_2-\text{CH}_2-\text{O})_n-(\text{CH}_2-\text{CH}(\text{CH}_3)-\text{O})_m-\text{H}$ mit $n > 2$, $m > 3$ und $(n+m) < 25$,
 - Derivaten von Blockcopolymeren aus Ethylen- und
20 Propylenglykol der allgemeinen Formel $\text{R}_1\text{O}-(\text{CH}_2-\text{CH}_2-\text{O})_n-(\text{CH}_2-\text{CH}(\text{CH}_3)-\text{O})_m-\text{H}$ bzw. $\text{HO}-(\text{CH}_2-\text{CH}_2-\text{O})_n-(\text{CH}_2-\text{CH}(\text{CH}_3)-\text{O})_m-\text{R}_1$ mit $n > 2$, $m > 3$ und $(n+m) < 25$ und R_1 als organischem Rest,
 - Derivate von Polyalkylenglykolen der allgemei-
25 nen Formel $\text{R}_1-\text{O}-(\text{R}_2-\text{O})_n-\text{H}$ mit $\text{R}_2 = \text{Alkylen}$ und $n \geq 2$, bei denen der Wasserstoff von einer der beiden terminalen Hydroxygruppen des Polyalkylenglykols durch einen organischen Rest R_1 ersetzt ist,
 - Derivate von Polyalkylenglykolen der allgemei-
30 nen Formel $\text{R}_1-\text{O}-(\text{R}_2-\text{O})_n-\text{R}_3$ mit $\text{R}_2 = \text{Alkylen}$ und $n > 5$, bei denen der Wasserstoff beider terminaler Hydroxygruppen des Polyalkylenglykols durch einen organischen Rest R_1 bzw. R_3 ersetzt
35 ist.

- 11 -

2. Verbundsicherheitsglas nach Anspruch 1, **dadurch gekennzeichnet, daß** die Polyalkylenglykole ausgewählt sind aus der Gruppe bestehend aus

- Polyethylenglykol $\text{HO}-(\text{CH}_2-\text{CH}_2-\text{O})_n-\text{H}$ mit $8 < n < 25$,
- 5 - Blockcopolymeren aus Ethylen- und Propylenglykol der allgemeinen Formel $\text{HO}-(\text{CH}_2-\text{CH}_2-\text{O})_n-(\text{CH}_2-\text{CH}(\text{CH}_3)-\text{O})_m-\text{H}$ mit $n > 3$, $m > 4$ und $(n+m) < 20$,
- Derivaten von Blockcopolymeren aus Ethylen- und Propylenglykol der allgemeinen Formel $\text{R}_1\text{O}-(\text{CH}_2-\text{CH}_2-\text{O})_n-(\text{CH}_2-\text{CH}(\text{CH}_3)-\text{O})_m-\text{H}$ bzw. $\text{HO}-(\text{CH}_2-\text{CH}_2-\text{O})_n-(\text{CH}_2-\text{CH}(\text{CH}_3)-\text{O})_m-\text{R}_1$ mit $n > 3$, $m > 4$ und $(n+m) < 20$ und R_1 als organischem Rest,
- 10 - Polybutylenglykol $\text{HO}-(\text{CH}_2-\text{CH}_2-\text{CH}_2-\text{CH}_2-\text{O})_n-\text{H}$ mit $4 < n < 18$,
- 15 - Derivate des Polyethylenglykols der allgemeinen Formel $\text{R}_1-\text{O}-(\text{CH}_2-\text{CH}_2-\text{O})_n-\text{H}$ mit $n \geq 2$ und R_1 als organischem Rest,
- Derivate des Polybutylenglykols der allgemeinen Formel $\text{R}_1-\text{O}-(\text{CH}_2-\text{CH}_2-\text{CH}_2-\text{CH}_2-\text{O})_n-\text{H}$ mit $n \geq 2$ und R_1 als organischem Rest.
- 20

3. Verbundsicherheitsglas nach Anspruch 1 oder 2, **dadurch gekennzeichnet, daß** der Anteil der Polyalkylenglykole am Gesamtansatz der Zwischenschicht größer als 10 Gew.-% und kleiner als 25 Gew.-% ist.

25

4. Verbundsicherheitsglas nach einem der Ansprüche 1 bis 3, **dadurch gekennzeichnet, daß** als weiterer Weichmacher in der Weichmachermischung wenigstens ein Weichmacher verwendet wird aus der Gruppe bestehend aus

30

- Estern von mehrwertigen aliphatischen oder aromatischen Säuren,
 - Estern von mehrwertigen aliphatischen oder aromatischen Alkoholen oder Oligoetherglykolen mit höchstens vier Ethereinheiten mit einem oder mehreren unverzweigten oder verzweigten aliphatischen oder aromatischen Substituenten, wie z.B. Dialkyladipat, Dialkylsebazat, Ester von Di-, Tri- oder Tetraglykolen mit linearen oder verzweigten aliphatischen Carbonsäuren.
- 35

- 12 -

5. Verbundsicherheitsglas nach Anspruche 4, **dadurch gekennzeichnet, daß** als weiterer Weichmacher mit einem Mengenan-
teil > 10 Gew.-% des Gesamtansatzes wenigstens ein Weich-
macher verwendet wird aus der Gruppe bestehend aus Di-n-
5 hexyladipat (DHA) und Triethylenglykol-bis-n-heptanoat
(3G7).
6. Verbundsicherheitsglas nach einem der Ansprüche 1 bis 5,
dadurch gekennzeichnet, daß als Harz ein Polyvinylbutyral
10 mit 19 bis 22 Gew.-% Vinylalkoholrest und 0,5 bis 2,5
Gew.-% Acetatrest verwendet wird.
7. Schalldämmende Folie zur Herstellung von Verbundsicher-
heitsgläsern, enthaltend:
- 15 - 50 bis 80 Gew.-% PVB (teilacetalisierter Polyvinylal-
kohol),
- 20 bis 50 Gew.-% einer Weichmachermischung, enthaltend
- 30 bis 70 Gew.-% - gerechnet als Anteil an der
Weichmachermischung - eines oder mehrerer Polyalky-
20 lenglykole der Gruppe bestehend aus
- Polyalkylenglykolen der allgemeinen Formel
 $\text{HO}-(\text{R}-\text{O})_n-\text{H}$ mit $\text{R} = \text{Alkylen}$ und $n > 5$,
- Blockcopolymeren aus Ethylen- und Propylengly-
kol der allgemeinen Formel $\text{HO}-(\text{CH}_2-\text{CH}_2-\text{O})_n-(\text{CH}_2-$
25 $\text{CH}(\text{CH}_3)-\text{O})_m-\text{H}$ mit $n > 2$, $m > 3$ und $(n+m) < 25$,
- Derivaten von Blockcopolymeren aus Ethylen- und
Propylenglykol der allgemeinen Formel $\text{R}_1\text{O}-(\text{CH}_2-$
 $\text{CH}_2-\text{O})_n-(\text{CH}_2-\text{CH}(\text{CH}_3)-\text{O})_m-\text{H}$ bzw. $\text{HO}-(\text{CH}_2-\text{CH}_2-\text{O})_n-$
 $(\text{CH}_2-\text{CH}(\text{CH}_3)-\text{O})_m-\text{R}_1$ mit $n > 2$, $m > 3$ und $(n+m) <$
30 25 und R_1 als organischem Rest,
- Derivate von Polyalkylenglykolen der allgemei-
nen Formel $\text{R}_1-\text{O}-(\text{R}_2-\text{O})_n-\text{H}$ mit $\text{R}_2 = \text{Alkylen}$ und n
 ≥ 2 , bei denen der Wasserstoff von einer der
beiden terminalen Hydroxygruppen des Polyalky-
35 lenglykols durch einen organischen Rest R_1 er-
setzt ist,
- Derivate von Polyalkylenglykolen der allgemei-
nen Formel $\text{R}_1-\text{O}-(\text{R}_2-\text{O})_n-\text{R}_3$ mit $\text{R}_2 = \text{Alkylen}$ und
 $n > 5$, bei denen der Wasserstoff von beiden

- 13 -

terminalen Hydroxygruppen des Polyalkylenglykols durch einen organischen Rest R_1 bzw. R_3 ersetzt ist.

5 8. Verwendung eines oder mehrerer Polyalkylenglykole der Gruppe bestehend aus

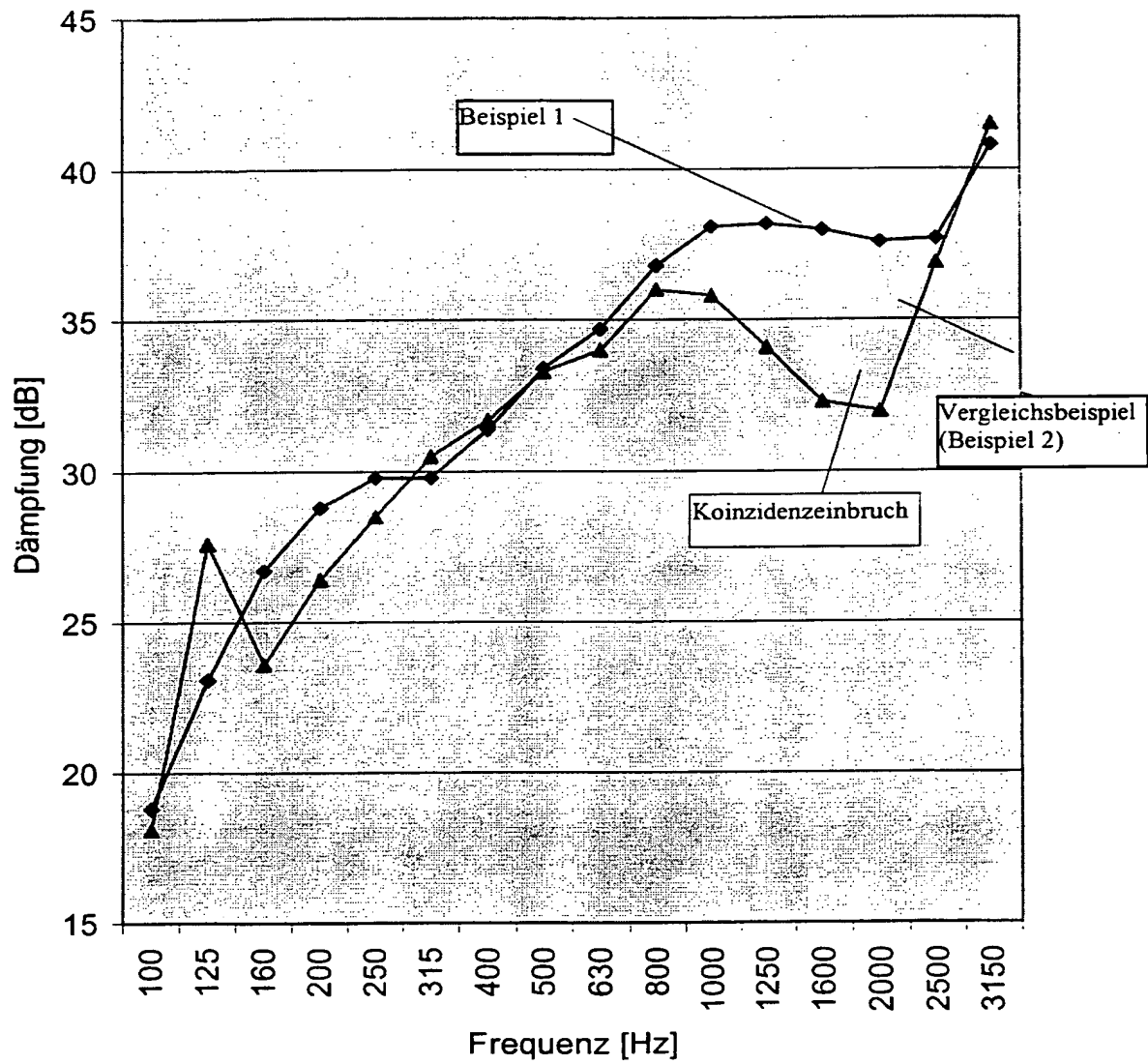
- Polyalkylenglykolen der allgemeinen Formel
 $\text{HO}-(\text{R}-\text{O})_n-\text{H}$ mit $\text{R} = \text{Alkylen}$ und $n > 5$,
- Blockcopolymeren aus Ethylen- und Propylenglykol der
10 allgemeinen Formel $\text{HO}-(\text{CH}_2-\text{CH}_2-\text{O})_n-(\text{CH}_2-\text{CH}(\text{CH}_3)-\text{O})_m-\text{H}$
mit $n > 2$, $m > 3$ und $(n+m) < 25$,
- Derivaten von Blockcopolymeren aus Ethylen- und Pro-
pylenglykol der allgemeinen Formel $\text{R}_1\text{O}-(\text{CH}_2-\text{CH}_2-\text{O})_n-$
 $(\text{CH}_2-\text{CH}(\text{CH}_3)-\text{O})_m-\text{H}$ bzw. $\text{HO}-(\text{CH}_2-\text{CH}_2-\text{O})_n-(\text{CH}_2-\text{CH}(\text{CH}_3)-$
15 $\text{O})_m-\text{R}_1$ mit $n > 2$, $m > 3$ und $(n+m) < 25$ und R_1 als or-
ganischem Rest,
- Derivate von Polyalkylenglykolen der allgemeinen For-
mel $\text{R}_1-\text{O}-(\text{R}_2-\text{O})_n-\text{H}$ mit $\text{R}_2 = \text{Alkylen}$ und $n \geq 2$, bei de-
nen der Wasserstoff von einer der beiden terminalen
20 Hydroxygruppen des Polyalkylenglykols durch einen or-
ganischen Rest R_1 ersetzt ist,
- Derivate von Polyalkylenglykolen der allgemeinen For-
mel $\text{R}_1-\text{O}-(\text{R}_2-\text{O})_n-\text{R}_3$ mit $\text{R}_2 = \text{Alkylen}$ und $n > 5$, bei de-
nen der Wasserstoff beider terminaler Hydroxygruppen
25 des Polyalkylenglykols durch einen organischen Rest R_1
bzw. R_3 ersetzt ist,

als ein die Schalldämmung erhöhender Zusatz in aus weich-
gemachtem PVB-Harz hergestellten Folien für Verbundsicher-
heitsgläser, wobei die Schalldämmung des Verbundsicher-
heitsglases durch den Zusatz der Polyalkylenglykole bei
30 der Koinzidenzfrequenz im Bereich von 1.000 bis 3.500 Hz
um mindestens 2 dB, gemessen nach DIN EN ISO 717, erhöht
wird.

THIS PAGE BLANK (USPTO)

- 1/1 -

Diagramm 1



THIS PAGE BLANK (USPTO)